

# PHILIPS TECHNISCH TIJDSCHRIFT

JAARGANG 30, 1969, no. 2

## Automatisch tekenen van maskers voor geïntegreerde schakelingen

C. Niessen en H. E. J. Wulms

*Numerieke besturing, die bij de metaalbewerking reeds veel wordt toegepast, blijkt ook een bijzonder goed hulpmiddel te zijn voor het fabriceren van geïntegreerde schakelingen. Uit de gegevens van de schakeling kan men een computer een besturingsband voor een numeriek bestuurd tekentafel laten genereren, die dan de voor de fabricage vereiste stabieleen-maskers automatisch tekent of snijdt. Volgens een thans uitgewerkte methode behoeven hiertoe de bedoelde gegevens slechts in zeer summiere vorm aan de computer te worden gepresenteerd, nl. als gecodeerde omschrijving van de gewenste componenten (b.v. het type transistor, de schematische vorm van een weerstand, enz.), hun positie en hun onderlinge verbindingen.*

De belangrijkste categorie der geïntegreerde schakelingen maakt men door in een silicium-monokristal op bepaalde plaatsen *P*- en *N*-geleidende gebieden te vormen. Op deze wijze kan men nl. weerstanden, transistors en diodes in het kristal maken, en men kan iedere gewenste schakeling tot stand brengen wanneer men de diverse componenten op een geschikte manier met elkaar verbindt door middel van aluminiumsporen.

De hierboven genoemde gebieden worden gevormd door een reeks van diffusieprocessen, die men uitvoert met behulp van een soort fotografische techniek. Men gaat uit van een substraat van silicium van type *P*, waarop een *N*-laag is aangegroeid. Het oppervlak van deze laag oxideert men in een geschikte atmosfeer tot  $\text{SiO}_2$ . Men bedekt daarna de oxidelaag met een fotolak en belicht vervolgens de lak via een *fotomasker*, dat ondoorzichtig is op de plaatsen waar men een *P*-gebied wenst. Daarna wordt de niet belichte lak opgelost en verwijderd. Nu volgt een etsing, waarbij het  $\text{SiO}_2$  alleen daar verdwijnt waar geen fotolak aanwezig is (dus waar het *P*-gebied komen moet). Ten slotte verwijdert men ook de belichte lak, en men verhit het kristal in een boriumhoudende atmosfeer. Op de plaat-

sen waar het  $\text{SiO}_2$  is weggeëtst, diffundeert het borium dan in het *N*-silicium en men verkrijgt een *P*-verontreiniging, die men zo diep laat doordringen als men wenst.

Omdat de diverse componenten van een schakeling elektrisch van elkaar geïsoleerd moeten zijn, begint men altijd met een zg. scheidingsdiffusie, uitgevoerd met het *scheidingsmasker*. Hierbij wordt volgens een kanalenpatroon een verontreiniging van type *P* door de *N*-laag gediffundeerd tot aan het substraat. Er ontstaan dan een aantal *N*-eilanden die ieder geheel omsloten zijn door *P*-materiaal.

In een van de *N*-eilanden kan nu b.v. een weerstand gemaakt worden. Het silicium wordt daartoe opnieuw geoxideerd en men vormt op soortgelijke wijze als boven, door een zg. weerstandsdiffusie en gebruik maken van een *weerstandsmasker*, een *P*-gebiedje in het *N*-eiland. Dit *P*-gebiedje is de weerstandsbaan. Na opnieuw oxideren worden aan de uiteinden van de weerstandsbaan in het  $\text{SiO}_2$  contactgaten geëtst. Het fotomasker dat in deze derde stap wordt gebruikt heet *contactgatenmasker*. Door de contactgaten te bedekken met aluminium kan men de weerstand verbinden met andere componenten. In een vierde stap worden deze verbindingen met behulp van het *aluminiummasker* uit een homogeen opgedampte laag aluminium geëtst. De

*Ir. C. Niessen en ir. H. E. J. Wulms, medewerkers van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.*

aldus verkregen weerstand is in *fig. 1a* in doorsnede getekend, de vier gebruikte maskers zijn afgebeeld in *fig. 1b*.

Diodes en transistors worden op soortgelijke manier gemaakt, met dien verstande dat de maskers die voor het maken van een weerstand gebruikt worden tegelijkertijd dienen om de overeenkomstige diffusies voor diodes en transistors tot stand te brengen. We zullen hier overigens niet dieper op ingaan, omdat het maken van dergelijke geïntegreerde schakelingen in dit tijdschrift al eerder uitvoerig ter sprake gekomen is <sup>[1]</sup>.

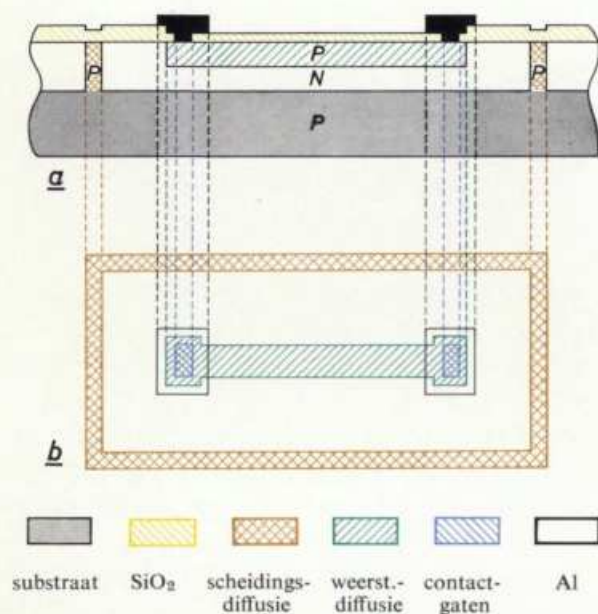


Fig. 1. a) Dwarsdoorsnede door een weerstand in een geïntegreerde schakeling, op een substraat van P-silicium (grijze tint). Om de overeenkomst tussen de maskers en de diffusiepatronen aan te geven, zijn deze laatste gestileerd weergegeven.

b) Het stel maskers voor het maken van deze weerstand. De maskers zijn in verschillende kleuren getekend en over elkaar heen gelegd.

### Fabricage van de fotomaskers

In iedere stap van het hierboven geschetste procédé heeft men een fotomasker nodig om selectieve belichting toe te passen. Voor één schakeling heeft men dus een aantal fotomaskers nodig.

Om deze maskers te maken, gaat men uit van het elektrisch schema. Men ontwerpt een schakeling die een zo klein mogelijke oppervlakte beslaat en waarbij de componenten zonder kruisingen verbonden kunnen worden door aluminiumsporen. De eigenschappen van de componenten worden bepaald door de afmetingen van de verschillende diffusiepatronen. De ontwerper moet dus de contouren in de diverse maskers nauwkeu-

rig aangeven in één tekening — meestal op een schaal 200:1 —, waarin duidelijkheidshalve voor ieder masker een aparte kleur gebruikt wordt. Hij moet daarbij nog enige regels in acht nemen: voor de afstanden tussen verschillende diffusiegebieden en ook voor de afmetingen van diverse contouren zijn minima voorgeschreven. Het resultaat is een zeer gedetailleerde tekening — layout genoemd —, die alle gegevens van de te maken schakeling bevat.

Vervolgens moeten aan de hand van deze tekening de contouren op dezelfde schaal gesneden worden in een vel stabieleen, een kunststof bestaande uit een doorzichtige en een ondoorzichtige laag. Na het verwijderen van het ondoorzichtige materiaal binnen een gesneden contour (een bewerking die „strippen” genoemd wordt) houdt men de *stabieleenmaskers* over. Via fotografische verkleinings- en repeteerstappen worden nu de definitieve maskers gemaakt.

Vroeger werd het tekenen van de layout en het snijden van de stabieleenmaskers met de hand uitgevoerd. Het was een tijdrovend werk met een grote kans op fouten, terwijl de controle ernstig werd bemoeilijkt door de onoverzichtelijkheid van het beeld dat men krijgt wanneer men de stabieleenmaskers over elkaar legt.

In het ontwerp komen echter veel standaardcomponenten voor, en ook componenten waarvan sommige details geen nadere specificatie behoeven: de contactgaten van een weerstand b.v. moeten zich op een vaste afstand van de diffusierand bevinden. Verder is gebleken dat de schakelingen tegenwoordig steeds meer zich herhalende patronen bevatten. Het ligt daarom voor de hand hier te gaan automatiseren. We zullen in dit artikel iets meedelen over het werk dat in deze richting gedaan is in Philips' Natuurkundig Laboratorium te Eindhoven. Het hier ingerichte maskercentrum heeft de beschikking over een tekentafel die numeriek bestuurd kan worden met behulp van de COBRA <sup>[2]</sup>, een speciale kleine computer ontwikkeld voor numerieke besturing van gereedschapswerktuigen. De hier ontwikkelde methode om de stabieleenmaskers met behulp van deze machine automatisch te tekenen en te snijden zal nu worden geschetst.

### Numerieke besturing

Over numerieke besturing zijn er in dit tijdschrift al enkele artikelen verschenen <sup>[3]</sup>. Een numeriek bestuurd apparaat heeft een besturingsorgaan dat gevoed wordt door een besturingsband. Dit is meestal een band van papier, kunststof of metaal, waarin gegevens zijn geponst die het besturingsorgaan nodig heeft om het gereedschap (in dit geval een tekenpen of graveergereedschap) de gewenste baan te laten volgen. Meestal zijn er veel gegevens nodig om deze baan te omschrij-

ven. Daarom is men al spoedig computers gaan gebruiken om de besturingsband te maken uit een veel kleiner aantal *gemakkelijk te coderen* gegevens. De computerprogramma's die met dat doel ontwikkeld werden hebben er aanzienlijk toe bijgedragen dat numerieke besturing de taak van de ontwerper werkelijk verlicht. Men heeft ernaar gestreefd de programma's zo te schrijven dat allerlei details van het te maken werkstuk aan de computer „bekend” zijn. Men voegde nl. aan het programma een „bibliotheek” van gegevens toe, en de ontwerper van een werkstuk kan met enkele aanwijzingen teweegbrengen dat de door hem gewenste gegevens uit die bibliotheek gekozen en in de besturingsband gepost worden. Nog belangrijker is dat de ontwerper allerlei *berekeningen* kan laten uitvoeren. Dikwijls verlangt hij b.v. dat het gereedschap een bepaalde cirkelvormige baan beschrijft, en hij heeft dan slechts het woord CIRCLE, gevolgd door de coördinaten van het gewenste middelpunt en de lengte van de straal, door de computer te laten lezen. Dit heeft tot gevolg dat de computer daarna bepaalde „subroutines” of „procedures” uitvoert om de gegevens die voor de besturing van het gereedschap nodig zijn te berekenen en in de besturingsband te ponsen.

Het programma dat wij hier voor het tekenen en snijden van stabiele maskers hebben ontwikkeld bezit een zodanig „invoersysteem” dat de gebruiker daarin gemakkelijk de *componenten* van een gewenste schakeling, hun *posities* en hun onderlinge *verbindingen* kan omschrijven. De hierbij gebruikte invoercode, die hieronder nader wordt besproken, heeft de naam DRAW gekregen (*drawing* of *art work*<sup>[4]</sup>).

De eerste stap, het maken van een ontwerp van een geïntegreerde schakeling door uit te gaan van het elektrisch schema, is nog steeds niet geautomatiseerd. Het is bijzonder moeilijk gebleken voor dit werk vaste regels te vinden. Een zo compact mogelijke opstelling van de componenten met een bedrading zonder kruisingen maakt men met de hand, en het is nog altijd een kwestie van proberen en opnieuw proberen, op grond van inzicht en ervaring.

### Codering van de componenten

Nu het DRAW-systeem beschikbaar is, heeft de ontwerper van een schakeling slechts een lijst van de componenten en van hun posities in het ontwerp te coderen. Wanneer in de schakeling zich herhalende deelschakelingen voordoen, heeft de lijst zelfs niet volledig te zijn. De ontwerper kan nl. door middel van een kopieeropdracht teweegbrengen dat een gespecificeerde groep van componenten herhaalde malen wordt geplaatst. De computer berekent dan hieruit alle detailgegevens die nodig zijn voor de besturing van de tekenpen of het graveergereedschap.

We zullen hier de codering van een weerstand wat uitvoerig bespreken. We kunnen dan kort zijn over de codering van andere componenten. Daarna behandelen we de kopieeropdracht, en we schetsen ten slotte de werking van het DRAW-rekenprogramma.

### Codering van een weerstand

Een weerstand kan in ons systeem met één opdracht gecodeerd worden wanneer voldaan is aan de volgende voorwaarden: de weerstandsbaan heeft een constante breedte en bestaat uit een of meer stukken die afwisselend in de *X*-richting en in de *Y*-richting lopen; de aansluitvlakken zijn gekozen uit een verzameling gestandaardiseerde typen. De opdracht om een dergelijke weerstand te genereren wordt gegeven door:

$$\text{RES/X, Y/D, F}_1, \text{F}_2, \text{ØR/A}_1, \text{A}_2, \dots, \text{A}_n$$

De parameters in deze opdracht hebben de volgende betekenis:

RES geeft aan dat het om een weerstand gaat;

X en Y zijn de coördinaten van het referentiepunt, hiermee is volgens een bepaalde afspraak de plaats van de weerstand in het ontwerp vastgelegd;

D is de (constante) breedte van de weerstandsbaan;

F<sub>1</sub> en F<sub>2</sub> zijn de codenummers van de aansluitvlakken;

ØR is de oriëntatie van het eerste stuk van de weerstandsbaan, hier moet een H of een V ingevuld worden, om aan te geven dat het eerste stuk horizontaal dan wel verticaal loopt, d.w.z. evenwijdig met of loodrecht op de *X*-as van het gekozen coördinatenstelsel;

A<sub>1</sub>, A<sub>2</sub>, ..., A<sub>n</sub> zijn de lengten van de hartlijnen van de respectieve baanstukken, ze zijn voorzien van een teken om de richting aan te geven.

Om de betekenis van deze parameters nog verder te verduidelijken, toont fig. 2 een weerstandsbaan die het resultaat is van de opdracht:

$$\text{RES/7.5, 20/2.5, 4, 2, V/-13, 3(7.5, 13, 7.5, -13)17.5}$$

In de parameterlijst staat een rijtje getallen tussen haakjes. De hiermee bedoelde baanstukken worden even vaak getekend als de factor ervoor aangeeft, in dit geval dus driemaal. De opdracht heeft uiteindelijk tot gevolg dat er contouren worden getekend of gesneden

[1] A. Schmitz, Kristalschakelingen, Philips techn. T. 27, 152-159, 1965/66.

[2] R. Ch. van Ommering en G. C. M. Schoenaker, De COBRA, een kleine digitale rekenmachine voor numerieke besturing van gereedschapswerktuigen, Philips techn. T. 27, 285-298, 1965/66.

[3] Zie vooral: J. Vlietstra, De APT-programmeertaal voor numerieke besturing van gereedschapswerktuigen, Philips techn. T. 28, 339-345, 1967.

[4] De naam „art work” wordt in de Amerikaanse literatuur veel gebruikt.

in drie stabiele maskers: een meandervormige baan in het weerstandsmasker, contactgaten in het contactgatenmasker, en aansluitvlakken in het aluminiummasker.

Bij deze weerstandsopdracht worden geen gegevens voor het scheidingsmasker berekend. Men mag verscheidene weerstanden in één eiland plaatsen. Er is dan nog een aparte opdracht nodig om ervoor te zorgen dat in het scheidingsmasker van de geïntegreerde schakeling het desbetreffende eiland getekend wordt.

Het is ook mogelijk weerstanden te coderen die niet aan de hierboven genoemde voorwaarden voldoen.

Een opdracht aan de computer om een transistor te verwerken ziet er uit als:

TLLN/X, Y/L, SP, ALFA

De parameters in deze opdracht hebben de volgende betekenis:

TLLN is de „naam”, die aanduidt welke gegevens uit de bibliotheek in het DRAW-rekenprogramma gehaald moeten worden;

X en Y zijn de coördinaten van het referentiepunt, voor een rechthoekige transistor b.v. is dit volgens af-

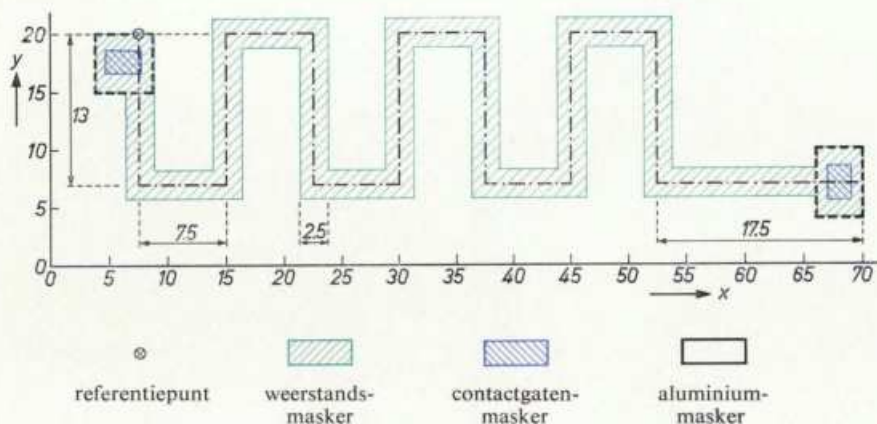


Fig. 2. Een weerstand met een meandervormige weerstandsbaan. In de DRAW-code luidt de opdracht om deze weerstand te genereren:

RES/7.5, 20/2.5, 4, 2, V/-13, 3(7.5, 13, 7.5, -13)17.5

In het algemeen heeft men daarvoor meer dan één opdracht nodig. Het valt echter buiten het bestek van dit artikel om alle faciliteiten van DRAW te belichten.

#### Codering van een transistor

De ontwerper heeft de keuze uit 182 gestandaardiseerde typen van transistors. De afmetingen daarvan, en dus ook de elektrische eigenschappen, komen overeen met die van de losse „bread-board” transistors, die op dezelfde manier worden gemaakt als geïntegreerde schakelingen en waarmee de ontwerper een proefschakeling samenstelt om de elektrische eigenschappen van de ontworpen schakeling te onderzoeken. Deze transistors worden gekarakteriseerd door een „naam” beginnend met een T gevolgd door drie letters en een cijfer. Daarmee wordt verwezen naar de bibliotheek die in het DRAW-rekenprogramma aanwezig is, en waarin de maskergegevens van alle gestandaardiseerde transistors zijn opgenomen.

spraak het links onder gelegen hoekpunt;

L is de lengte van de emitter;

SP houdt een opdracht tot spiegeling in; hier moet men SPX of SPY invullen, wanneer men een spiegeling ten opzichte van de X-as dan wel de Y-as van de transistor wenst; wanneer men hier niets invult, blijft een spiegeling achterwege;

ALFA is de hoek waarover de transistor rond het referentiepunt gedraaid moet worden; als men geen rotatie wenst behoeft men hier niets in te vullen.

#### Kopieeropdrachten

Een digitale schakeling is dikwijls opgebouwd uit een aantal identieke basisschakelingen, zodat men haar kan beschrijven door de componenten van de basisschakeling steeds opnieuw te coderen met andere coördinaten. De opdracht COPY biedt een elegantere oplossing: men zorgt ervoor dat de desbetreffende basisschakeling wordt voorafgegaan door de opdracht

BEGINCOPY en gevolgd door ENDCOPY. Aan de laatstgenoemde opdracht worden nog de kopieergegevens toegevoegd. Een volledige ENDCOPY-opdracht wordt b.v. gegeven door:

ENDCOPY/SP, ALFA/DX, DY/N

waarin de parameters de volgende betekenis hebben:

SP is weer een opdracht tot spiegeling; door het invullen van SPX of SPY bewerkt men dat de basisschakeling gespiegeld wordt ten opzichte van de X-as dan wel de Y-as van het coördinatenstelsel waarin men werkt; wanneer men niets invult, blijft spiegeling achterwege;

ALFA geeft de hoek aan waarover de basisschakeling gedraaid moet worden rond de oorsprong van het coördinatenstelsel; wanneer men niets invult, blijft rotatie achterwege;

DX en DY zijn de lengten van de verschuiving die de basisschakeling moet ondergaan in de richting van resp. de X-as en de Y-as;

N is het gewenste aantal kopieën.

fig. 5 toont de tekening die met behulp van de geproduceerde besturingsband werd gemaakt.

De te programmeren schakeling bestaat uit vijf identieke basisschakelingen, elk samengesteld uit twee transistors en drie weerstanden. Het is voldoende deze basisschakeling slechts éénmaal te coderen, nl. met twee transistoropdrachten (TABT0), drie weerstandsoopdrachten (RES), één RHK-opdracht, die voor een zondanige rechthoekige contour in het scheidingsmasker

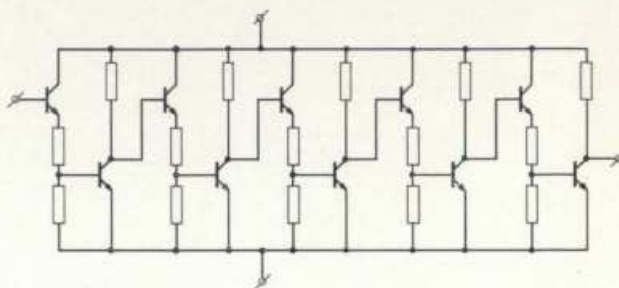


Fig. 3. Elektrisch schema van een als voorbeeld beschouwde geïntegreerde schakeling.

| CARDNO | LINENUMBER |                                           |
|--------|------------|-------------------------------------------|
| 1      | 0          | BEGINCOPY                                 |
| 2      | 1          | TABT0/10,118/12,                          |
| 3      | 2          | TABT0/10,48/12,SPX,                       |
| 4      | 3          | RHK/11,5,51/3/31,5,64                     |
| 5      | 4          | RES/18,75,78/3,5,1,1,V/32,5               |
| 6      | 5          | RES/33,75,78/3,5,1,1,V/32,5               |
| 7      | 6          | RES/16,59,25/5,5,4,M/18,75,10,75,-16,7,75 |
| 8      | 7          | ALU/38,5,124/7,4,-8,-5,5,-7,5             |
| 9      | 8          | ALU/27,125,5/7,3,-2,5/-5,-1,4/-8,-10      |
| 10     | 9          | ALU/27,40,5/7,3/4/-5,1,4/14/-6,5          |
| 11     | 10         | ALU/32,25,42/7,3,5/27/-15,11              |
| 12     | 11         | ALU/38,5,42/7,4/41                        |
| 13     | 12         | ALU/43,5,11/7,4/-35,5/,33,5/17,9          |
| 14     | 13         | ALU/38,5,83/7,3,5/13/7,                   |
| 15     | 14         | ALU/6,96/7,4/5,25/,17,75/10,25,7,25/,3    |
| 16     | 15         | ALU/40,5,147,5/7,4/10,5,                  |
| 17     | 16         | ENDCOPY//37,5,/4                          |
| 18     | 17         | RHK/7,20/3/190,126                        |
| 19     | 18         | ALU/8,94,5/7,4/-2/-8,-18/BV               |
| 20     | 19         | ALU/201,147,5/7,4/2/,8,-13/BV             |
| 21     | 20         | ALU/195,96/7,4/2/,14,-6/BV                |
| 22     | 21         | ALU/193,5,11/7,4/2/,15,5,8/BV             |
| 23     | 22         | URK/201,60/                               |
| 24     | 23         | KRB/-20,/250,160                          |
| 25     | 24         | EINDE                                     |

Fig. 4. Programma in DRAW-code voor de geïntegreerde schakeling, behorend bij het in fig. 3 afgebeelde elektrisch schema.

### Voorbeeld van een DRAW-programma

Fig. 3 toont het elektrisch schema van een geïntegreerde schakeling, waarvan we de volledige programmering hier bij wijze van voorbeeld behandelen. De lijst van DRAW-opdrachten om de besturingsband voor deze schakeling te maken is afgebeeld in fig. 4, en

zorgt dat de drie weerstanden in één eiland liggen, en een aantal ALU-opdrachten die zorgen voor de aluminiumsporen om deze componenten te verbinden. Deze groep van opdrachten wordt voorafgegaan door BEGINCOPY en afgesloten met

ENDCOPY//37,5,/4

waarmee de ontwerper te kennen geeft dat de basischakeling viermaal gekopieerd moet worden, telkens over een afstand van 37,5 mm in de *X*-richting verschoven. Daarna vindt men nog enkele opdrachten die niet herhaald behoeven te worden. De gebieden in het scheidingsmasker die buiten de door de transistor-opdrachten en de RHK-opdracht gevormde eilanden liggen vormen een bijna volledig kanalenpatroon. Om dit patroon te voltooien, is een rechthoekige contour om de reeds gevormde eilanden nodig; deze wordt ge-

### Verwerking door de computer

De in kaarten of in papierband geponste opdrachten worden door de computer gelezen en allereerst onderzocht op fouten in de codering.

Wanneer dergelijke fouten niet aangetroffen worden, begint de computer de gegevens voor het eerste masker te verzamelen. Daartoe worden alle opdrachten geïnspecteerd, maar de computer kiest en berekent alleen de gegevens die bij het eerste masker behoren. Het ontwerp wordt vervolgens verdeeld in een groot aantal

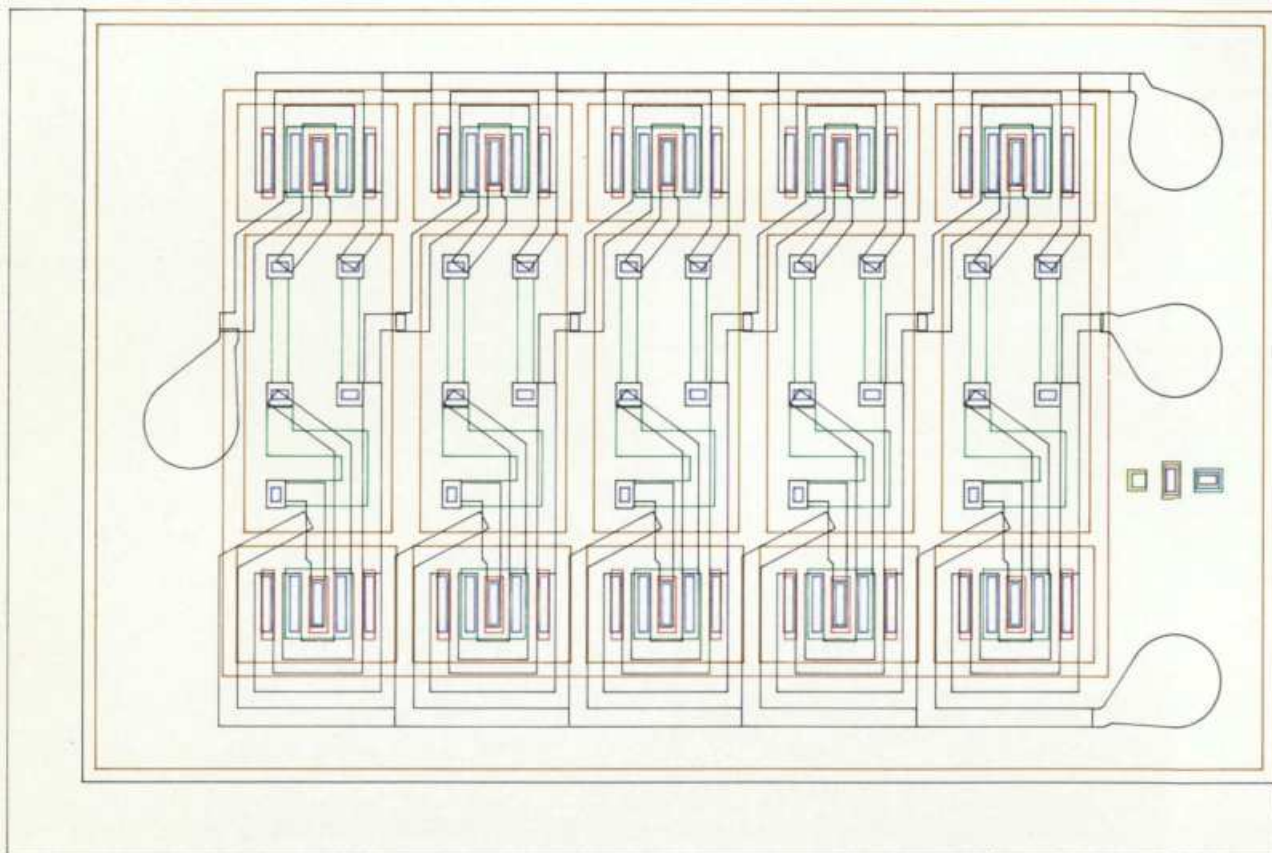


Fig. 5. Een tekening, automatisch gemaakt met behulp van de besturingsband die het resultaat is van het in fig. 4 afgebeelde DRAW-programma. Een dergelijke tekening kan gebruikt worden om de besturingsband te controleren.

genereerd met nog een RHK-opdracht. Verder vindt men in het programma nog enkele ALU-opdrachten, die zorgen voor de aansluitvlakken van de schakeling; de KRB-opdracht die zorgt voor een krasbaan, waardoor de schakeling naderhand kan worden gescheiden van de andere schakelingen die tijdens hetzelfde fabricageproces op het kristal zijn aangebracht; en ten slotte de URK-opdracht, die zorgt voor de justeerkenmerken om het masker op de siliciumplak te kunnen justeren.

gebieden, die ieder een volgnummer toegewezen krijgen. Aan de berekende contouren wordt ook een volgnummer toegekend. Daarna worden alle gegevens voor het eerste masker in de besturingsband geponst in de volgorde van de nummering. Deze is zodanig dat later bij het tekenen of snijden zo min mogelijk onnodige bewegingen gemaakt worden. De ontwerper heeft echter de vrijheid om zijn opdrachten in willekeurige volgorde te geven.

Zoals voor de hand ligt, inspecteert de computer

daarna weer alle opdrachten, om de gegevens voor het tweede masker te verzamelen en in de besturingsband te ponsen. Dit proces wordt voortgezet totdat alle maskers die men voor het maken van de schakeling nodig heeft zijn afgewerkt.

Men controleert de besturingsband door hem te presenteren aan een numeriek bestuurd tekentafel die de maskers in verschillende kleuren over elkaar tekent. Wanneer deze tekening (layout) is goedgekeurd, gaat dezelfde band naar het maskercentrum, waar de maskers automatisch in stabieleen gesneden worden. Controle of de stabieleenmaskers op elkaar passen is niet meer nodig. Het is voldoende om na te gaan of de stabieleenvellen op de juiste manier zijn gestript. Algemeen kan men zeggen dat door de beschreven werkwijze de kans op fouten veel geringer is geworden, terwijl veel tijd wordt bespaard doordat het snijden van de stabieleenmaskers aanzienlijk sneller gaat en het ontwerp niet meer tot in alle details getekend hoeft te worden. De

ontwerper hoeft slechts die contouren te schetsen die voor het coderen nodig zijn. Voor de schakeling van fig. 3 b.v. genereert de computer een ongeveer 40 m lange ponsband, die ca. 16 000 tekens bevat. Het in fig. 4 getoonde programma, dat daarvoor geschreven werd, bestaat uit slechts ca. 600 tekens.

---

**Samenvatting.** Het artikel laat zien hoe numerieke besturing toegepast kan worden bij het fabriceren van geïntegreerde schakelingen. Het beschrijft, om te beginnen, de rol die stabieleenmaskers spelen bij het maken van de componenten, en het toont vervolgens hoe men het maken van deze maskers kan vereenvoudigen door ze automatisch te laten tekenen en snijden. Daartoe heeft men aan een computer slechts een beperkt aantal gemakkelijk te coderen gegevens te presenteren. In dit artikel wordt de codering van weerstanden en transistors en het werken met kopieeropdrachten iets nader behandeld. Een volledig programma voor het maken van een eenvoudige schakeling en een schets van de manier waarop een computer de opdrachten verwerkt besluiten het artikel.

---

## De polytypie van siliciumcarbide

A. H. Gomes de Mesquita

---

*Siliciumcarbide is een stof met vele interessante toepassingsmogelijkheden, waarvan sommige hoge eisen stellen aan de materiaalbeheersing. Een van de grootste problemen daarbij is het verschijnsel van polytypie, het feit dat de dubbellagen van koolstof- en siliciumatomen die het kristalrooster vormen op talloos vele wijzen opeengestapeld voorkomen. Dit leidt tot evenzovele variaties van sommige fysische eigenschappen.*

---

Siliciumcarbide komt op aarde maar heel sporadisch als mineraal voor, en dan nog in niet-exploiteerbare hoeveelheden. Vrijwel al het beschikbare materiaal is dan ook in het laboratorium of in de fabriek bereid. De eerste synthese dateert uit de vorige eeuw. Sedert die tijd bestaat er voor de stof een voortdurend groeiende belangstelling, die gemakkelijk te verklaren valt uit de bijzondere combinatie van chemische en fysische eigenschappen. Siliciumcarbide is namelijk buitengewoon hard, stijf en trekvast, het weerstaat tot hoge temperaturen de inwerking van vrijwel alle chemicaliën, het is een uitstekende, zeer hittevlaste warmtegeleider en het is bovendien een halfgeleider, zodat interessante toepassingen op diverse gebieden mogelijk zijn.

Het eerst heeft men van de hardheid gebruik weten te maken: gepoederd siliciumcarbide is een vanouds bekend slijp- en polijstmiddel. Daarna volgden de toepassing als elektrisch verhittingselement, als spanningsafhankelijke weerstand, en als weerstand met negatieve temperatuurcoëfficiënt, voornamelijk voor gebruik bij hoge temperaturen. De laatste tijd worden er ook verschillende soorten diodes van siliciumcarbide vervaardigd, zij het nog niet op grote schaal. En ten slotte begint men thans whiskers (draadvormige kristallen) van siliciumcarbide te gebruiken ter versterking van kunststoffen en metalen.

Deze korte opsomming van eigenschappen en toepassingen, die overigens verre van volledig is, mag verklaren waarom men ook in het Philips' Natuurkundig Laboratorium al sinds twee decennia onderzoekingen over siliciumcarbide verricht. Deze hebben aanzienlijk bijgedragen tot de kennis van dit materiaal, getuige een groot aantal publikaties<sup>[1]</sup>, en hebben geleid tot vele nieuwe toepassingsmogelijkheden.

Wanneer men enige van de belangrijkste toepassingen in chronologische volgorde beschouwt: slijp-

middel — verhittingselement — diode, dan is het duidelijk dat men het materiaal mettertijd steeds beter moet zijn gaan beheersen. Immers, het doet er meestal weinig toe of een slijpmiddel enigszins verontreinigd is, maar het is essentieel dat men de verontreinigingsgraad van halfgeleidermaterialen zorgvuldig in de hand kan houden. Dit geldt zowel ten aanzien van chemische als van fysische verontreinigingen, waarbij men tot de laatste categorie o.m. alle stapelfouten en dislocaties moet rekenen, die het kristalrooster van de stof verstoren.

Inderdaad heeft de bereiding van siliciumcarbide een grote ontwikkeling doorgemaakt. Van het technische Acheson-procédé — dat overigens nog steeds op grote schaal wordt toegepast en waarbij men uitgaat van zand, cokes, keukenzout en zaagsel — is men thans gekomen tot een zuivere laboratoriumsynthese, die een produkt oplevert waarin de totale hoeveelheid chemische verontreinigingen is teruggebracht tot minder dan 1 vreemd atoom op  $10^7$  eigen atomen.

Met de beheersing van de fysische kristalfouten is men nog niet zo ver gevorderd. Dit hangt samen met het verschijnsel van polytypie, dat zich bij siliciumcarbide in optima forma voordoet. Het houdt in dat er — in tegenstelling tot vrijwel alle andere bekende stoffen — van siliciumcarbide zeer vele kristallijne modificaties (typen) bestaan, die weliswaar sterk aan elkaar verwant zijn, maar die ook duidelijk onderlinge verschillen vertonen. Tot nu toe heeft men er al zo'n honderdveertig geteld en er worden nog voortdurend nieuwe ontdekt.

De kristalstructuren van al deze modificaties kunnen worden beschreven in het hexagonale kristalstelsel, met een *a*-as van omstreeks 3 Å (0,3 nm); de lengte van de *c*-as varieert echter van 5 Å tot 1000 Å (100 nm). Deze laatste afstand is — verwonderlijk genoeg — 100 maal groter dan die waarover de invloed van de ons bekende ordenende krachten in kristallen zich doet gelden.

Polytypie, dat is dus het vóórkomen van een groot aantal typen van een stof met kristalstructuren die slechts

*Dr. A. H. Gomes de Mesquita, medewerker van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.*

in één dimensie verschillen, is niet alleen waargenomen bij siliciumcarbide, maar o.a. ook bij zinksulfide, cadmiumsulfide en cadmiumjodide. Van quasi-polytypie spreekt men bij stoffen waarin kleine verschillen in chemische samenstelling de atoomstapelning in slechts één richting beïnvloeden. De ferrieten zoals  $\text{BaFe}_{18}\text{O}_{27}$  en  $\text{Ba}_2\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  vormen waarschijnlijk het bekendste voorbeeld. Ook hier wordt de kristalstructuur beschreven in het hexagonale stelsel en is de  $a$ -as van de eenheidscel gefixeerd, ditmaal op 6 Å, terwijl de  $c$ -as varieert van 15 tot 1500 Å.

Fysisch gezien is polytypie bijzonder interessant. Met de lengte van de  $c$ -as, maar niet eenvoudigweg evenredig daarmee, varieert ook het energieverschil tussen de elektronen in de hoogste niveaus van de valentieband en de laagste niveaus van de geleidingsband. Deze zg. indirecte band-gap kan in siliciumcarbide waarden aannemen tussen 2,4 en 3,3 eV, een variatie met maar liefst zo'n 30 à 40%. Ook de bewegelijkheden en de effectieve massa's der elektronen hangen ten nauwste samen met de kristalstructuur. Het in siliciumcarbide opgewekte elektroluminescentielicht kan, afhankelijk van de voorhanden kristalmodificatie, vrijwel elke kleur van de regenboog bezitten. De kleur van met stikstof (of andere donoren) gedoteerd materiaal is sterk afhankelijk van het structuurtype.

De oorzaken voor het ontstaan der vele structuurtypen zijn ondanks veel studie nog steeds niet volledig opgehelderd. Van een stof als zilverjodide schijnt de kristalstructuur te worden bepaald door kleine afwijkingen van de stoichiometrie; bij siliciumcarbide is dit niet aangetoond. In zinksulfide komen structuren met grote herhalingsafstanden tot stand tijdens het afkoolen van reeds gevormde kristallen; alles wijst er echter op dat bij siliciumcarbide de verschillende structuurtypen onmiddellijk tijdens de groei ontstaan.

In deze situatie is het voorlopig nog niet goed mogelijk het verschijnsel polytypie meer in zijn algemeenheid te behandelen. De feiten en argumenten die in dit artikel met betrekking tot siliciumcarbide naar voren worden gebracht gelden dan ook niet altijd zonder meer voor andere stoffen waarbij polytypie voorkomt.

### De kristalstructuur

Er zijn in de loop der jaren vele kristallografische onderzoeken verricht aan siliciumcarbide. Studies van de uitwendige kristalvormen brachten reeds vroeg het bestaan van een aantal verschillende modificaties aan het licht met trigonale, hexagonale, romboëdrische en kubische symmetrie en met sterk variërende roosterconstanten. Met behulp van röntgenanalytische methodes zijn niet alleen nog veel meer modificaties ontdekt, maar is ook in een groot aantal daarvan de onderlinge rangschikking der atomen bepaald [2]. Sommige daar-

van zullen wij thans wat meer in detail bespreken; daarbij zullen ook de diverse nomenclaturen ter sprake komen die ter aanduiding van de structuurtypen worden gebruikt.

Om een beeld te krijgen van de kristalstructuur van siliciumcarbide denke men zich eerst een vlakke laag, uitsluitend bestaande uit siliciumatomen, die op een onderlinge afstand van 3,08 Å volgens een dichtste bolstapelning gerangschikt zijn (fig. 1). Het (tweedimensionale) herhalingspatroon is een ruitvormige eenheidscel met zijden van de zoëven genoemde lengte. Recht boven deze laag, op een afstand van 1,89 Å, brengt men

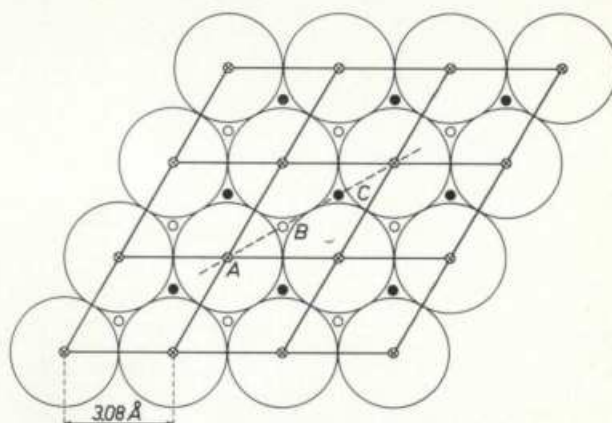


Fig. 1. Dichtste bolstapelning van atomen in een plat vlak. Het tweedimensionale herhalingspatroon is een ruitvormige figuur met atomen op de positie A (de hoekpunten) en holtes bij B en C. Deze laatste twee posities zijn equivalent in een geïsoleerde laag; dat is niet langer het geval zodra er meer op elkaar gestapeld zijn.

nu een congruente laag koolstofatomen aan. In de aldus ontstane dubbellaag kan men twee stellen holtes onderscheiden, op de plaatsen die met B en C zijn aangeduid. Boven één van deze twee stellen plaatst men een volgende dubbellaag, waarin wederom twee stellen holtes voorkomen, enz. Men merke op dat er voor elke dubbellaag twee plaatsingsmogelijkheden zijn; hierop berust in wezen de polytypie.

Bovenstaande wijze van stapelen brengt met zich mee dat alle atomen komen te liggen op assen van de typen A, B en C, die in fig. 1 loodrecht op het vlak van tekening staan. Elke kristallografische eenheidscel bevat één as van elk dezer drie typen. Aangezien deze in één plat vlak liggen, kan de gehele kristalstructuur tweedimensionaal worden weergegeven, door een doorsnede

[1] Zie b.v. W. F. Knippenberg, Growth phenomena in silicon carbide, Philips Res. Repts. **18**, 161-274, 1963; W. F. Knippenberg en G. Verspui, Influence of impurities on the growth of silicon carbide, wordt gepubliceerd in Mat. Res. Bull.

[2] Tot voor kort was dit veelal onbegonnen werk, maar thans bestaat hiervoor een vrij eenvoudige standaardmethode, die in een groot aantal gevallen kan worden toegepast. Zie hiervoor: M. Farkas-Jahnke, Acta cryst. **21**, A173, 1966; A. H. Gomes de Mesquita, Acta cryst. **B24**, 1461, 1968 (no. 11).

volgens het vlak *ABC* loodrecht op fig. 1.

Wanneer opeenvolgende dubbellen telkens de posities *ABCABC* . . . (fig. 2a) bezetten, dan ontstaat een structuur die bij nadere beschouwing kubisch blijkt te zijn (zinkblendestructuur), d.w.z. men kan door transformatie van coördinaten tot een beschrijving van de structuur komen in het kubische assenstelsel. Ook de stapeling in tegengestelde richting *CBACBA* . . . correspondeert met de kubische structuur. Wij willen hier niet verder op ingaan. Wel zij opgemerkt dat kubisch

of  $\beta$ -SiC het eindproduct is van vele chemische reacties waarbij siliciumcarbide wordt gevormd.

Als tijdens de kristalgroei van  $\beta$ -SiC een stapelfout wordt gemaakt waarbij de volgorde der lagen omkeert en dus overgaat van *ABC* . . . in *CBA* . . ., dan verkrijgt men een tweelingkristal: *ABCABCBA* (fig. 2b). Komt een dergelijke fout enige malen voor, dan kan men nog spreken van een veelling. Bij grote frequentie van en onregelmatige afstanden tussen de fouten kan men de toestand slechts aanduiden als een van structu-

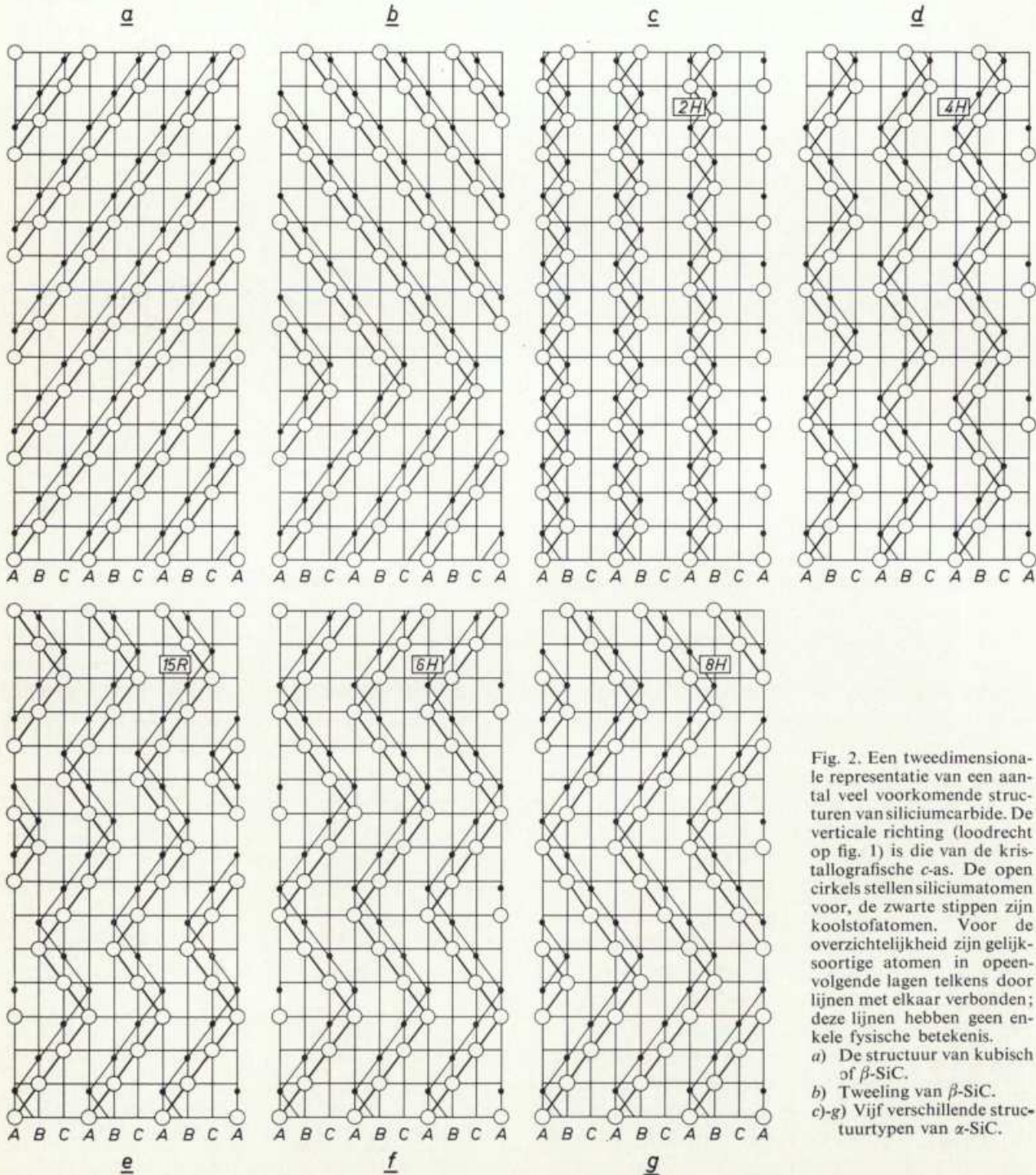


Fig. 2. Een tweedimensionale representatie van een aantal veel voorkomende structuren van siliciumcarbide. De verticale richting (loodrecht op fig. 1) is die van de kristallografische *c*-as. De open cirkels stellen siliciumatomen voor, de zwarte stippen zijn koolstofatomen. Voor de overzichtelijkheid zijn gelijksoortige atomen in opeenvolgende lagen telkens door lijnen met elkaar verbonden; deze lijnen hebben geen enkele fysische betekenis.  
a) De structuur van kubisch of  $\beta$ -SiC.  
b) Tweeling van  $\beta$ -SiC.  
c)-g) Vijf verschillende structuurtypen van  $\alpha$ -SiC.

rele wanorde, die hier dus beperkt is tot één dimensie. Dit kan zover gaan dat de stapeling der lagen geheel willekeurig is. Blijkens het experiment komen al deze stapelwijzen in siliciumcarbide voor.

De mogelijkheid bestaat echter ook dat de stapelvolgorde frequent en *periodiek* van richting omkeert. De vele modificaties van siliciumcarbide waarin dit het geval is worden algemeen onder de naam  $\alpha$ -SiC samengevat. In de aparte naamgeving komt reeds tot uiting dat  $\alpha$ -SiC als een vorm van siliciumcarbide wordt beschouwd die zich duidelijk onderscheidt van de kubische fase. Met name mag men het niet zien als een soort bij de groei mislukt  $\beta$ -SiC.

Een aantal van de meest voorkomende structuren van  $\alpha$ -SiC zijn afgebeeld in de figuren 2c t/m 2g. De stapeling  $ABAB \dots$  (fig. 2c) correspondeert met de welbekende wurtzietstructuur. Langs de kristallografische  $c$ -as, d.i. de verticale as in fig. 2, bestaat het herhalingspatroon uit twee dubbellagen. De eenheidscel blijkt bij nadere beschouwing hexagonaal te zijn. Daarom wordt deze modificatie ook wel als 2H aangeduid.

Iets ingewikkelder is de eveneens hexagonale stapeling  $ABCBA\overline{BCBA} \dots$  (fig. 2d). De atoomstapeling herhaalt zich telkens na vier lagen, de structuur wordt met 4H aangeduid. Aangezien de lagen waarin de atomen op de as  $B$  gesitueerd zijn, op dezelfde wijze omgeven zijn als in de kubische structuur, noemt men deze ook wel „k”-lagen; dit in tegenstelling tot de lagen met atomen op  $A$  en  $C$ , waarvan de directe omgeving overeenkomt met de structuur 2H en die dan ook als „h”-lagen worden aangeduid. In de hierop gebaseerde nomenclatuur wordt de structuur 4H beschreven als  $hk\overline{hk} \dots$ . Een andere nomenclatuur, indertijd ingevoerd door Zhdanov [3], telt het aantal lagen dat zich telkens bevindt tussen de omkeerpunten in de atoomstapeling. Bij 4H zijn dit er steeds twee, zodat de structuur ook als (22) kan worden geschreven. Op dezelfde wijze schrijft men voor 2H ook wel (11), terwijl  $\beta$ -SiC het symbool  $\infty$  (oneindig) krijgt.

De fig. 2f en 2g leveren nu geen moeilijkheden meer. De daar afgebeelde modificaties zijn resp. 6H en 8H, die men ook kan aanduiden als hkkhkk en hkkhkkkk of (33) en (44).

Iets moeilijker is de structuur die in fig. 2e is weergegeven. Kubische en hexagonale lagen wisselen elkaar af volgens de formule hkkhk en deze atoomstapeling herhaalt zich telkens na vijf lagen. Maar gezien langs de kristallografische *c*-as vormen deze vijf lagen geen herhalingsafstand. Als de atomen van de eerste laag op de as *A* liggen, dan komen die van de zesde laag niet op *A* maar op *B* terecht. Nu kan men de structuur wel beschrijven in een cel die slechts vijf lagen bevat, maar deze kristallografische cel is dan niet hexagonaal doch romboëdrisch. Wil men voor de overzichtelijkheid

ook de romboëdrische structuren in een hexagonaal stelsel beschrijven, dan kiest men de cel driemaal zo groot, zodat deze — in dit geval — 15 lagen bevat. De in fig. 2e afgebeelde structuur wordt dan ook als 15R of  $(32)_3$  aangeduid <sup>[4]</sup>.

De tot nu toe besproken structuren van  $\alpha$ -SiC behoren tot de meest eenvoudige; 6H, 15R en 4H zijn (in deze volgorde) tevens de meest voorkomende. Een beschrijving van alle overige siliciumcarbidestructuren zullen wij hier niet geven. Ter illustratie van de mogelijke gecompliceerdheid vermelden wij echter [5]:

$$174R = [33333363333333334]_3:$$

$$120R = [322222222222322233]_3;$$

$$33T = [3333353334]:$$

$$168R = [232323232323232333]_3$$

### Polymorfie en polytypie

Het voorkomen van meer dan één kristallijne modificatie van een stof is op zichzelf niets bijzonders. Wanneer dit verschijnsel bij verbindingen optreedt, wordt het polymorfie genoemd, bij elementen allotropie. Schoolvoorbeelden zijn wit en grijs tin, grafiet en diamant, witte en violette fosfor, telkens twee verschijningsvormen van eenzelfde vaste stof.

In het geval van tin is er een faseovergang bij 13 °C. Beneden die temperatuur is bij atmosferische druk het grauwe tin stabiel, daarboven het witte. De snelheid waarmee de omzetting plaatsvindt is echter dermate gering dat tinnen voorwerpen in het algemeen niet uiteenvallen ten gevolge van temperatuurschommelingen in de omgeving. Toch komt dit wel eens voor en dan spreekt men van tinpest.

Diamant en grafiet kunnen reversibel in elkaar worden omgezet bij zeer hoge drukken. Onder atmosferische omstandigheden is grafiet de stabiele vorm; de omzetting van diamant in grafiet vindt dan echter niet met meetbare snelheid plaats.

Zoals onderzoeken hebben aangetoond, is er in deze gevallen steeds voor elke modificatie een existentiegebied aan te wijzen, d.w.z. een bepaald gebied van druk en temperatuur waarbinnen zo'n modificatie stabiel is. Bij violette en witte fosfor is dat niet zo; de laatste is namelijk onder alle omstandigheden metastabiel. Rechtstreekse omzettingen van violette in witte fosfor zijn daarom ook niet mogelijk. Omgekeerd vindt

[3] G. S. Zhdanov, C. R. Acad. Sci. U.R.S.S. **48**, 43, 1945.

[4] Op analoge wijze wordt de structuur van  $\beta$ -SiC ook wel als 3C aangeduid. Het cijfer „3” duidt weer op de herhalingsafstand langs de kristallografische  $c$ -as, de letter C (van „cubic”) op de kubische symmetrie.

[9] Er is slechts één kubische modificatie. Alle andere zijn romboëdrisch (R), hexagonaal (H) of trigonaal. Delaatste worden in de literatuur meestal eveneens met H, soms echter ook met T aangeduid, vandaar hier 33T.

de omzetting van witte in violette fosfor natuurlijk wel plaats, bij kamertemperatuur weliswaar onmeetbaar langzaam, maar bij verhoogde temperatuur met meetbare snelheid.

Keren wij nu terug tot ons eigenlijke onderwerp, dan ligt het verband met het voorgaande voor de hand. De vraag naar de oorzaak van het polytypieverschijnsel impliceert immers tevens een vraag naar de stabiliteit van de verschillende structuurtypen. Zijn er voor enkele of voor alle modificaties existentiegebieden aan te wijzen, en zo ja, kan men dan ook inzien waarom onder bepaalde omstandigheden één structuur stabiel is dan alle andere?

Zoals wij in de bovenstaande voorbeelden reeds zagen, verlopen omzettingen in de vaste stof dikwijls zeer traag. Het feit dat één charge van een oven meestal vele verschillende typen SiC-kristallen tegelijk oplevert, en dat zelfs in één brokje siliciumcarbide dikwijls nog verschillende structuurtypen voorkomen, bewijst dan ook weinig omtrent hun stabiliteit. Het illustreert voornamelijk dat ook in siliciumcarbide fazeovergangen zeer langzame processen zijn, zeker bij kamertemperatuur, zodat wij de evenwichtssituatie, met één stabiele structuur, niet bereiken. Bij hogere temperaturen zou men een versnelling van de overgangsverschijnselen verwachten, maar ook daar zijn — verwonderlijk genoeg — overgangen in situ nooit waargenomen. Er is dus langs deze weg geen rechtstreeks bewijs voor de stabiliteit of metastabiliteit van enig structuurtype gevonden.

Tot uitspraken over de stabiliteit van bepaalde modificaties kan men in principe ook geraken op grond van nauwkeurige metingen van een aantal thermodynamische grootheden, zoals de verbrandingswarmte en de soortelijke warmte als functie van de temperatuur. Bij siliciumcarbide zijn deze grootheden slechts in twee gevallen bepaald, namelijk voor  $\beta$ -SiC en voor  $\alpha$ -SiC van het type 6H. Daarbij zijn waarden van de verbrandingswarmte gevonden die binnen de foutengrenzen aan elkaar gelijk zijn, zodat nauwkeuriger proeven nodig zijn om de eventuele verschillen aan te tonen. Dat is ook weer niet zo verwonderlijk, want de eerste en tweede omringing der atomen is in alle structuren dezelfde. Daarmee hangt samen dat de dichtheden der verschillende structuurtypen niet meer dan ongeveer 0,1% uiteenlopen. Bij tin, koolstof en fosfor zijn de overeenkomstige verschillen zeer veel groter. In de inleiding hebben wij gezien dat polytypie opvalt door het grote aantal modificaties en de onbegrijpelijk lange herhalingsafstanden in het kristalrooster. Op grond van het bovenstaande willen wij daaraan toevoegen dat polytypie zich tevens onderscheidt van de normale polymorfie door de subtiliteit van de verschillen die de stabiliteit van de kristallijne fazen bepalen. Daardoor

is het thans nog steeds niet mogelijk gebleken de eventuele existentiegebieden zelfs van de meest voorkomende structuurtypen van siliciumcarbide duidelijk af te bakenen.

### Enige theorieën over polytypie

Er zijn in de loop der jaren vele speciale theorieën opgesteld ter verklaring van het polytypieverschijnsel. Hieruit blijkt eens te meer dat polytypie wordt opgevat als een verschijnsel dat duidelijk afwijkt van de normale polymorfie en een aparte verklaring behoeft. In enkele theorieën wordt elke modificatie als een stabiele faze beschouwd. De meeste echter gaan ervan uit dat toevallige oorzaken zoals verontreinigingen en roosterfouten aanleiding geven tot de groei van pathologische structuren. Soms ook worden in één theorie de beide soorten argumenten, thermodynamische en groeikinetische, in combinatie gehanteerd.

De eerste poging tot verklaring staat op naam van Lundqvist<sup>[6]</sup>, die polytypie toeschreef aan de invloed van chemische onzuiverheden. Deze mening baseerde hij op de door hem waargenomen verschillen in het aluminiumgehalte van technische kristallen van type 4H, 15R en 6H (fig. 3). Aanvankelijk hebben in dit laboratorium verrichte proeven van Knippenberg<sup>[1]</sup> op dit punt geen bevestiging gegeven, want bij opzettelijk met aluminium gedoteerde siliciumcarbidekristallen kon geen verband tussen aluminiumgehalte en kristalstructuur worden aangetoond, mits de kristallen onder overigens identieke omstandigheden waren gegroeid.

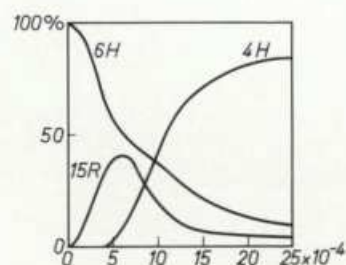


Fig. 3. Verband tussen het aluminiumgehalte en de relatieve aantallen kristallen (in %) van de drie meest voorkomende typen van  $\alpha$ -SiC (ontleend aan D. Lundqvist<sup>[6]</sup>).

Recentelijk is het echter toch mogelijk gebleken de groei van enkele eenvoudige structuurtypen door toevoeging van — bij toeval ontdekte — verontreinigingen te stimuleren. Met gecompliceerde structuren is dit nog nooit gelukt; men zou zich trouwens niet licht kunnen indenken hoe deze onder invloed van verontreinigingen zouden kunnen ontstaan. Dit gecombineerd met het feit dat ook in kristallen van de hoogste zuiverheid nog zeer gecompliceerde structuren, zoals b.v. 387H, zijn gevonden, wijst erop dat de oorzaak voor het ontstaan althans van deze laatste elders moet worden gezocht.

Een latere theorie schrijft de groei van alle behalve enkele van de meest eenvoudige structuren toe aan de invloed van schroefdislocaties. Om deze theorie, oorspronkelijk opgesteld door Frank <sup>[7]</sup>, enigermate te kunnen begrijpen, denke men zich een groeiend kristal, b.v. van het type 6H, waarin door de een of andere oorzaak tijdens de groei een schroefdislocatie ontstaat, die zich nu via een groeispiraal voortplant. Een schematische en zeer aanschouwelijke voorstelling van een dergelijk kristalgroeimechanisme vinden wij in *fig. 4*, ontleend aan Read <sup>[8]</sup>. Wanneer de Burgers-vector van de dislocatie, d.i. de hoogte van één blokje in de figuur, een geheel aantal malen 6 lagen omvat, zal volgens deze theorie de structuur 6H ongewijzigd verder groeien. Is de Burgers-vector echter 5 laagafstanden groot, dan verkrijgt men de structuur  $15R = (32)_3$ , met 7 laagafstanden ontstaat  $(331)_3 = (34)_3 = 21R$ , met 8 laagafstanden  $(332)_3 = (35)_3 = 24R$ , met 11 laagaf-

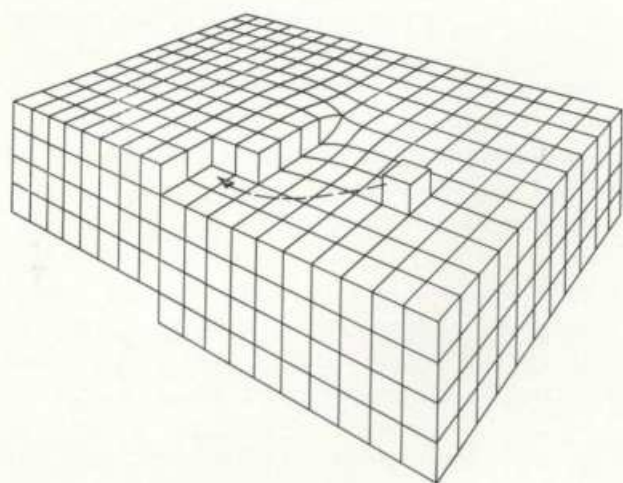


*Fig. 4.* Schematische voorstelling van kristalgroei door middel van een schroefdislocatiemechanisme (volgens Read <sup>[8]</sup>). De hoogte van een blokje is gelijk aan de Burgers-vector. Volgens de theorie van Frank <sup>[7]</sup> is dit tevens de herhalingsafstand van het groeiende structuurtype.

standen  $(3332)_3 = 33R$ , enz. Zo is deze theorie in staat het vóórkomen van een groot aantal gevonden structuren te verklaren en bovendien zelfs nieuwe structuren te voorspellen, die dan achteraf weer vaak gevonden zijn. In overeenstemming met deze theorie is ook het feit dat structuren met lange periode meestal worden gevonden in evenwijdige vergroeiing met eenvoudige typen zoals 4H, 15R of 6H; het is dus best mogelijk dat de eenvoudige structuren dienen als basis voor de meer ingewikkelde. Soms ook vindt men op de basisvlakken van siliciumcarbidekristallen fraaie groeispiralen als zichtbaar bewijs voor de aanwezigheid van een schroefdislocatie in het inwendige (*fig. 5*); de spoed van de schroef is in een aantal gevallen gelijk gebleken aan de lengte van de kristallografische *c*-as (herhalings-



*Fig. 5.* Groeispiralen op het oppervlak van een siliciumcarbidekristal. Deze foto, evenals *fig. 8b* en *10*, is gemaakt door W. F. Knippenberg.

afstand) van het gegroeide type, hetgeen de samenhang tussen de kristalstructuur en de lengte van de Burgers-vector demonstreert.

Er is echter ook een groot aantal gevallen bekend waarin deze samenhang in het geheel niet kon worden aangetoond, hetzij door het totaal ontbreken van enige groeispiraal waar deze toch wel zou worden verwacht, hetzij doordat de spoed niet overeenkomt met de periodiciteit van de structuur. Vand en Hanoka <sup>[9]</sup> hebben erop gewezen dat de theorie hierdoor nog niet wordt weerlegd, omdat er altijd een aannemelijke kans bestaat dat het kristaloppervlak anders is gegroeid dan het inwendige, waaraan met behulp van röntgendiffractiemethodes de structuur wordt bepaald.

Er zijn echter meer bezwaren tegen de schroefdislocatietheorie aan te voeren. De energie van zo'n dislocatie is in eerste benadering evenredig met het kwadraat van de lengte van de Burgers-vector. Bij een lengte van de orde van 1000 Å wordt deze energie zeer groot, en het is dan ook niet in te zien, waarom het kristal deze energie wel zou kunnen leveren en niet die voor een groot aantal randdislocaties en stapelfouten, die zeer veel minder energie zouden vergen en die — omdat zij de schroefdislocatie kunnen doorkruisen — de periodiciteit van de schroef en daarmee van de structuur teniet zouden doen. Ook begrijpt men niet waarom — behalve in de structuur 2H — in geen enkel tot nu toe bekend SiC-type twee op elkaar volgende hexagonale dubbellen vóórkomen (overeenkomend met het cijfer „1” in het Zhdanov-symbool). Indien dit al een energetisch onvoordelige configuratie zou zijn, dan zou het energie-effect toch niet kunnen opwegen tegen de voor

<sup>[6]</sup> D. Lundqvist, *Acta chem. scand.* **2**, 177, 1948.

<sup>[7]</sup> F. C. Frank, *Phil. Mag.* **42**, 1014, 1951.

<sup>[8]</sup> W. T. Read, Jr., *Dislocations in crystals*, McGraw-Hill, New York 1953, blz. 144.

<sup>[9]</sup> V. Vand en J. I. Hanoka, *Mat. Res. Bull.* **2**, 241, 1967.

sommige schroefdislocaties vereiste energie.

Mede in verband met sommige bovengenoemde bezwaren heeft Jagodzinski <sup>[10]</sup> reeds vijftien jaar geleden een theorie opgesteld die van geheel andere uitgangspunten uitgaat, de z.g. vibratie-entropie-theorie. In deze theorie staat voorop dat  $\beta$ -SiC bij de vorming van de verbinding eigenlijk de stabiele modificatie is. De kubische kristallen zouden echter als uitwendige vorm de octaëdervorm bezitten, een gesloten figuur waarvan de groei in dit geval — naar men op goede gronden kan aannemen — slechts traag verloopt. Brengt men nu stapelfouten aan, dan kan het groeiproces veel sneller plaatsvinden en ontstaan er grotere kristallen. Wanneer wij deze bij voorkeur voor ons onderzoek uitkiezen, passen wij dus een negatieve selectie toe. Om nu nog te begrijpen waarom de stapelfouten *periodiek* in de kubische structuur worden ingebouwd, redeneert men als volgt. De verschillen in roosterenergie tussen de structuurtypen moeten bijzonder gering zijn, gezien de vrijwel identieke eerste en tweede omringing der atomen in alle structuren. Verwaarlozen we deze verschillen, dan rest ons eigenlijk slechts de waarschijnlijkheid in aanmerking te nemen voor de vorming van elk der structuren. In eerste instantie zou men geneigd zijn te zeggen dat elke willekeurige wanordelijke stapeling van dubbellagen waarschijnlijker is dan elke ordelijke opeenvolging, maar bij nadere beschouwing is dit toch minder evident. Immers, bij de hoge temperaturen waarbij SiC-kristallen worden gevormd, vertegenwoordigen de trillingen der atomen in het kristalrooster (roostertrillingen) een belangrijk deel van de energie-inhoud. De trillingen nu worden ernstig belemmerd door onregelmatigheden in het rooster. Daarom zou toch een periodieke stapeling de voorkeur krijgen. Dat in dit geval de roostertrillingen zo'n belangrijke rol spelen, komt doordat hun (driedimensionale) invloed wordt afgewogen tegen die van de ééndimensionale volgorde van stapelen der atoomlagen. Deze theorie werkt dus geheel met waarschijnlijkheden. De kans op een geordend rooster is groot. Naarmate de stapeling der dubbellagen echter ingewikkelder wordt en het verschil met een volledig ongeordende structuur kleiner neemt de kans op wanorde toe. De theorie voorspelt dus een zekere kans op stapelfouten die toeneemt met de lengte van de stapelperiode.

Deze voorspellingen zijn door Jagodzinski aan het experiment getoetst en in eerste instantie juist bevonden. In vele kristallen van eenvoudige structuurtypen en in de meeste met lang-periodieke structuren komt wanorde voor. Kristallen van de typen 6H en 15R zijn of goed geordend of hebben een wanordegraad (het relatieve aantal wanordelijk geplaatste dubbellagen) die schommelt rond de 12%, een uit de theorie als aanmerkelijk naar voren komende waarde (fig. 6).

Er bestaat echter twijfel aan de door Jagodzinski gepostuleerde stabiliteit van  $\beta$ -SiC, hetgeen zijn gehele theorie weer enigszins op losse schroeven zet. Een nog belangrijker bezwaar dat men tegen de theorie kan aanvoeren is, dat er van een statistische verdeling van de

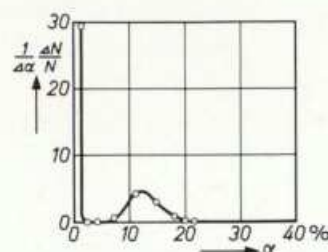


Fig. 6. De frequentieverdeling van de wanordegraad  $\alpha$  in een willekeurig monster van  $N (= 150)$  onderzochte kristallen, vrijwel alle van de typen 6H en 15R;  $\Delta N$  is het aantal kristallen met een wanordegraad tussen  $\alpha$  en  $\alpha + \Delta\alpha$ . (Ontleend aan H. Jagodzinski <sup>[10]</sup>.)

wanorde, die men op grond van een waarschijnlijkheidstheorie zou verwachten, nooit iets is gebleken. Integendeel, waar en voorzover onderzocht, bleek deze wanorde steeds gelokaliseerd in de kristallen voor te komen. Bovendien zijn er intussen verscheidene voorbeelden bekend geworden van structuren met lange periode en zonder aantoonbare wanorde; het vóórkomen daarvan zou volgens de theorie erg onwaarschijnlijk zijn. Ten slotte zijn er ook in de experimentele gegevens van Jagodzinski zelf aanwijzingen te vinden dat juist niet de lang-periodieke maar de eenvoudige structuren de meeste wanorde bevatten.

De drie bovenstaande theorieën, hoezeer ook verschillend, hebben met elkaar gemeen dat er een zekere mate van toeval nodig is voor het ontstaan van de diverse typen. In geen van deze theorieën komt de thermodynamische stabiliteit der structuren aan de orde <sup>[11]</sup>. Waarschijnlijk is daarom geen van deze theorieën van toepassing op de eenvoudige SiC-structuren, waar er gegronde redenen zijn om het bestaan van reële verschillen in vrije energie te aanvaarden. Zo constateerde Knippenberg <sup>[1]</sup> dat de veelvuldigheid waarmee de typen 4H, 15R, 6H en 8H voorkomen, een functie is niet alleen van de verontreinigingsgraad, zoals eerder vermeld, maar tevens van de groeitemperatuur (fig. 7). Ook blijkt het energieverval tussen het hoogste niveau van de valentieband en het laagste niveau van de geleidingsband van deze en een aantal andere eenvoudige typen duidelijk van de structuur af te hangen. Het is niet te boud te veronderstellen dat dan ook de bijdrage van de elektronenenergie tot de totale roosterenergie een structuurafhankelijke grootte is. De roosterconstanten en de gemiddelde „dikte” van de dubbellagen variëren, zij het ook zeer weinig, met het structuurtype, zoals aangetoond voor de typen 2H, 6H en

3C. Op grond van verfijnde röntgenanalytische bepalingen is bewezen dat „h”-lagen iets dikker zijn dan „k”-lagen. Hiermee zullen eveneens kleine verschillen in roosterenergie samenhangen.

In dit stadium is het moeilijk uit te maken welke structuren nu als echte evenwichtsfazen zouden moeten worden aangemerkt; de discussie over deze vraag is nog lang niet afgesloten. Op grond van het beschikbare experimentele materiaal is men geneigd een scheiding te maken tussen de structuren met lange en met korte periode en alleen aan de laatste eventueel een existentiegebied toe te schrijven. In dit verband kan worden verwezen naar het werk van Van Vucht en Buschow<sup>[12]</sup> in dit laboratorium over verbindingen van zeldzame aarden (R) met aluminium, van het type  $RAI_3$ . Deze hebben aan SiC verwante structuren van de typen 2H, 9R, 4H, 15R, 6H en 3C. Welk type wordt gevormd, hangt af van de atoomstraal van R en van de groeitemperatuur. Zo correspondeert de structuur van  $ErAl_3$  met 3C,  $HoAl_3$  met 15R, terwijl  $DyAl_3$  afhankelijk van de temperatuur de structuur 15R of 4H aanneemt. Aan de thermodynamische stabiliteit van deze structuren kan niet worden getwijfeld. Zinksulfide heeft dezelfde structuur als siliciumcarbide; beneden 1000 °C is de kubische fase stabiel, boven 1200 °C de structuur 2H. Studies verricht in het overgangsgebied hebben aanwijzingen opgeleverd voor de stabiliteit van de daar groeiende typen 4H en 6H van zinksulfide.

Voor de ingewikkelde typen, hetzij van SiC hetzij van ZnS zijn deze aanwijzingen er niet. Eerder dan hun bestaan en ontstaan te verklaren door onbekende langeafstandswisselwerkingen tussen atomen, zijn wij evenals Frank en Jagodzinski geneigd bijzondere omstandigheden tijdens de groei daarvoor verantwoordelijk te stellen. Ten einde na te gaan of dit terecht is, zullen wij ons moeten bezighouden met wat er bekend is van het onderlinge verband tussen groeiomstandigheden, kris-

talvorm en structuurtype. De desbetreffende onderzoeken zijn vrijwel alle verricht nadat de bovengenoemde theorieën waren geponeerd. Omgekeerd berusten deze theorieën voornamelijk op gegevens die op technisch siliciumcarbide betrekking hebben en niet op materiaal dat onder goed gedefinieerde omstandigheden is bereid. Het is dan ook niet verwonderlijk dat de latere kristalgroei-experimenten hebben geleid tot het opstellen van een nieuwe alternatieve verklaring van de polytype van siliciumcarbide. Deze zal aan het slot van dit artikel worden behandeld.

### De groei van siliciumcarbidekristallen

Zoals reeds eerder vermeld, gaat de technische bereiding van SiC volgens het Acheson-procédé uit van zand, cokes, keukenzout en zaagsel. De reactievergelijking luidt:  $3C + SiO_2 \rightarrow SiC + 2CO$ . De reactie vindt plaats in een oven waarvan men het centrale deel eerst tot 1900 °C verhit, vervolgens langzaam tot 2700 °C, om ten slotte een temperatuur van 2000 °C geruime tijd te handhaven. De chemische reactie verloopt reeds bij 1800 °C; hogere temperaturen zijn nodig om de rekristallisatie te bewerkstelligen, waarbij een eindproduct ontstaat dat geschikt is om als slijp- en polijstmiddel te gebruiken.

Bij laboratoriumsynthesen wordt dit proces in twee stappen gescheiden:

- a) de bereiding van SiC,
- b) de rekristallisatie.

Om te komen tot de vorming van zeer zuiver SiC gaat men uiteraard van heel andere stoffen uit dan de bovengenoemde. Een bekend uitgangspunt is b.v. methyltrichloorsilaan,  $CH_3SiCl_3$ , dat in een waterstofatmosfeer aan een zuivere grafietstaaf bij 1300-1800 °C wordt ontleed, waarbij SiC ontstaat. Dit procédé, dat naar Van Arkel is genoemd, biedt de mogelijkheid om grote chemische zuiverheid te bereiken. Kristallografisch gezien verkrijgt men echter zeer onzuivere produkten. De kristallen hebben nl. een zeer onregelmatige uiterlijke vorm en zijn opgebouwd uit een skelet van  $\alpha$ -SiC van onbepaalde structuur, waartussen grote hoeveelheden  $\beta$ -SiC zijn gegroeid, dat het hoofdbestanddeel van de kristallen uitmaakt.

De rekristallisatie vindt plaats bij hogere temperaturen, gewoonlijk tussen 2300 en 2700 °C. Daartoe vormt men van het verkregen SiC holle cilinders (fig. 8a), die in een grafietkroes in een argon- of heliumatmosfeer worden verhit (methode van Lely<sup>[13]</sup>). Aan

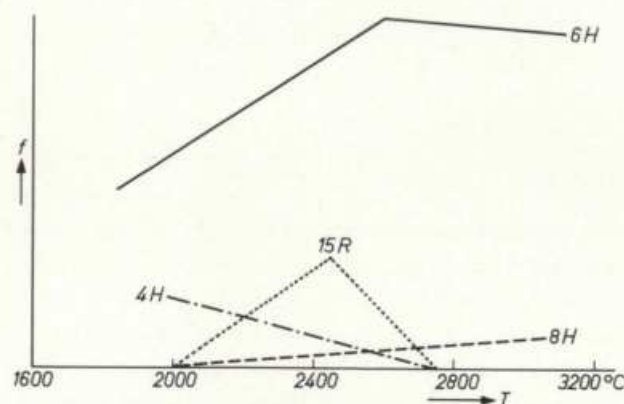


Fig. 7. Verband tussen de kristallisatietemperatuur en de relatieve hoeveelheden daarbij gevonden kristallen van een aantal eenvoudige structuurtypen. Deze figuur, evenals fig. 8a, 9 en 11, is ontleend aan W. F. Knippenberg<sup>[11]</sup>.

[10] H. Jagodzinski, Neues Jahrb. Mineral. Monatsh. 3, 49, 1954.

[11] Voor een theorie die het verschijnsel van polytype op thermodynamische gronden tracht te verklaren, maar die weinig of geen steun in het experiment vindt, zie C. J. Schneer, Acta cryst. 8, 279, 1955.

[12] J. H. N. van Vucht en K. H. J. Buschow, J. less-common Met. 10, 98, 1966.

[13] J. A. Lely, Ber. Dtsch. Keram. Ges. 32, 229, 1955.

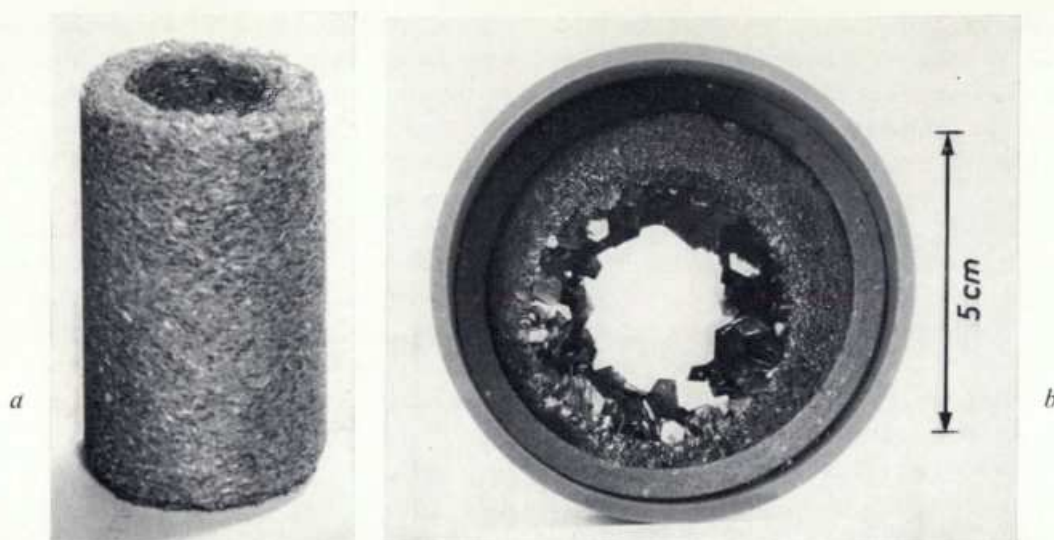


Fig. 8. Cilinders van SiC, a) vóór en b) na rekristallisatie, de laatste in een grafietkroes.

de buitenzijde van de cilinder treedt een gedeeltelijke ontleding van het SiC op, terwijl tegelijkertijd materiaaltransport plaatsvindt naar het binnenoppervlak van de cilinder, waar grote, meestal plaatvormige kristallen worden gevormd (fig. 8b). Een enkele keer vindt men daartussen ook wel eens polyedrische kristallen (fig. 9). In de plaatvormige kristallen zijn de typen 6H, 15R en 4H verreweg het sterkst vertegenwoordigd; de relatieve hoeveelheden zijn enigszins afhankelijk van de rekristallisatietemperatuur. Bij snel afkoelen van de cilinder blijkt zich tevens uit de sterk oververzadigde damp  $\beta$ -SiC af te zetten op de hexagonale platen (fig. 10). De hogere structuurtypen komen slechts sporadisch voor, in de regel vergroeid met één van de hierboven genoemde, eenvoudiger structuren. De meeste kristallen vertonen bovendien ook nog (niet-periodieke) stapelfouten.



Fig. 9. Kolomvormig SiC-kristal gegroeid te midden van plaatvormige kristallen bij 2550 °C in een argonatmosfeer.

Wat de kristalstructuur betreft gelijken deze plaatvormige kristallen zeer sterk op technisch SiC. Alleen de chemische zuiverheid is veel groter. De polyeders, waar wij nog uitvoeriger op terug zullen komen, bestaan meestal uit zuiver 6H waarin geen stapelfouten of andere structuurtypen voorkomen.

Behalve de bovengenoemde zijn er nog zeer veel andere manieren om siliciumcarbidekristallen te bereiden.

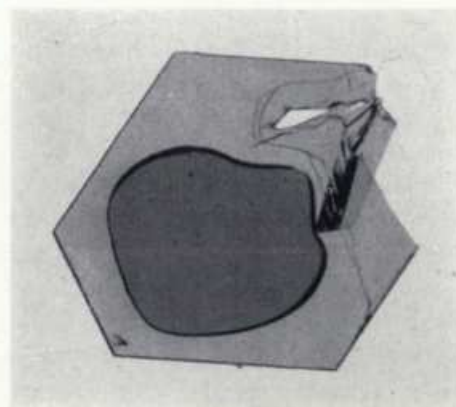


Fig. 10. Hexagonaal plaatvormig kristal waarop zich — tijdens de snelle afkoeling van de oven — een ronde plak kubisch siliciumcarbide heeft afgezet.

De reactie tussen koolstof en  $\text{SiO}_2$ , het eerste stadium van het Acheson-procédé, is uitvoerig onderzocht door Knippenberg [1]. Wanneer de reactie bij 1000-1800 °C plaatsvindt via gastransport of oppervlakediffusie, dan ontstaan whiskers van diverse vormen, zoals in een aantal voorgaande artikelen in dit tijdschrift is beschreven [14]. Deze whiskers hebben meestal de kubische structuur. Slechts onder invloed van bepaalde verontreinigingen ontstaat de structuur 2H. Gebruikt

men monokristallijn  $\alpha$ -SiC als substraat, dan nemen de whiskers waarvan de lengte-as loodrecht op de  $c$ -as van het substraat-kristal komt te staan de structuur van dit kristal over. Whiskers gericht langs de  $c$ -as van het substraat-kristal bezitten echter in de regel weer de kubische structuur. Met andere woorden: de in het substraat aanwezige hexagonale stapeling zet zich evenwijdig voort in de whiskers. Wanneer in deze laatste echter nieuwe lagen worden gevormd, dan krijgt onder deze omstandigheden de kubische stapeling de voorkeur. Boven  $1900^\circ\text{C}$  ontstaan door reacties in de gasfase plaatvormige kristallen van de typen 6H en 15R.

Ook uit smelten van verschillende samenstelling kunnen siliciumcarbidekristallen worden bereid. Uit siliciumsmelten heeft men microkristallijn  $\beta$ -SiC verkregen en uit diverse metaalsmelten kristallen van het type 6H. Een verwante maar meer verfijnde methode is de TSM (travelling solvent method), waarbij men tussen een monokristallijne ent en een polykristallijne staaf een chroom-zone aanbrengt [15]. Door middel van een soort zonesmeltprocédé, waarbij door een warmtebehandeling het chroom door de staaf wordt getrokken, kan men nu de ent laten aangroeien. Met deze methode is het mogelijk gebleken onder identieke omstandigheden de typen 4H, 15R en 6H als zodanig te laten voortgroeien in de richting van de  $c$ -as. Kristallen van deze structuur hebben bij deze groeicondities blijkbaar geen specifieke uitwendige invloeden nodig om te kunnen verder groeien; zij bezitten als het ware een intern geheugen van waaruit de stapeling der atoomlagen wordt geregeld. Het is helaas niet bekend of dit met de ingewikkelder structuren ook het geval is, want overeenkomstige groei-experimenten zijn daarmee nooit verricht.

Tracht men het geheel der kristalgroei-experimenten te overzien, dan komt men tot de volgende globale samenvatting.

De eenvoudige structuurtypen kunnen onder zeer uiteenlopende omstandigheden gevormd worden, waarbij nog kan worden opgemerkt dat 6H met verreweg de grootste frequentie voorkomt.

De gecompliceerde structuren daarentegen ontstaan (naar tot dusverre bekend) uitsluitend bij hogere temperaturen in kristallen die door reacties of rekristallisatie (Lely-methode) vanuit de gasfase en door oppervlaktediffusie groeien. Deze kristallen hebben voor het o ver grote deel een plaatvormige habitus.

Het groeimechanisme van dergelijke volgens de Lely-methode bereide kristallen is zowel door Kroko [16] als door Knippenberg [11] nader onderzocht, en wel op een zeer vernuftige wijze.

Het blijkt nl. dat de op zichzelf vrijwel kleurloze kristallen gekleurd kunnen worden door toevoeging van een geringe hoeveelheid stikstof tijdens de groei. Daardoor worden b.v. kristallen 6H groen, 15R geel, 4H bruinachtig. Laat men nu tijdens de rekristallisatie plotseling stikstof toe in de oven, dan verkrijgt men kristallen met scherpe kleurovergangen, zodat duidelijk telkens twee groeistadia te onderscheiden zijn. Fig. 11 geeft daarvan een voorstelling. Men ziet hier dat de plaatvormige, of soms ook wigvormige, kristallen la-

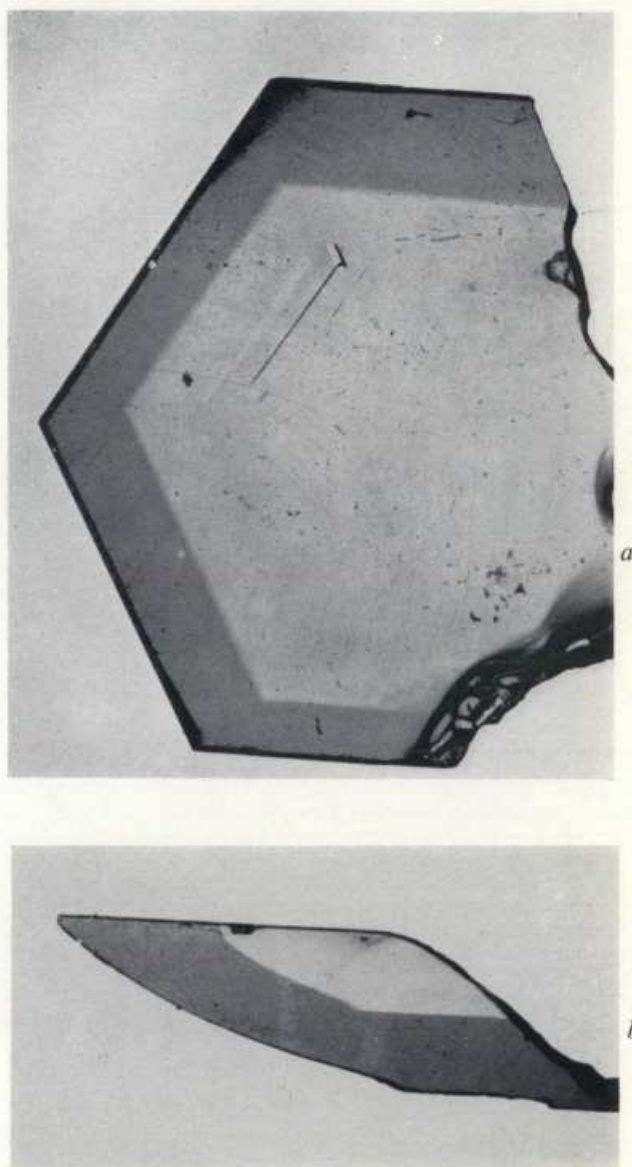


Fig. 11. Wigvormige kristallen van  $\alpha$ -SiC waaraan in een gevorderd stadium van de groei stikstof is toegevoegd. De groeistadia zijn daardoor duidelijk herkenbaar. a) Een bovenaanzicht van het basisvlak, b) doorsnede evenwijdig aan de hexagonale as, dus loodrecht op het vlak van (a).

[14] W. F. Knippenberg, H. B. Haanstra en J. R. M. Dekkers' Philips techn. T. 24, 175, 1962; H. B. Haanstra en W. F. Knippenberg, Philips techn. T. 26, 232, 1964/65; W. F. Knippenberg en G. Verspui, Philips techn. T. 29, 273, 1968.

[15] W. F. Knippenberg en G. Verspui, Philips Res. Repts. 21, 113, 1966.

[16] L. J. Kroko, J. Electrochem. Soc. 113, 801, 1966.

mellair groeien tegen de polykristallijne cilinderwand. Geheel in overeenstemming met dit mechanisme is het feit dat wanneer verschillende structuurtypen in één kristal aanwezig zijn, deze ook als lamellen op elkaar gestapeld plegen voor te komen. Dit kan worden aangetoond door het kristal lamellair af te slijpen en in elk stadium een röntgenopname te maken. Men ziet de structuurtypen dan successievelijk uit het röntgendiagram verdwijnen. Een dergelijk experiment is door ons verricht aan een kristal dat behalve een zone met willekeurige stapelfouten ook zones met 6H, 8H en 24R bevatte (fig. 12). Een analoog geval, gerapporteerd door Kuo Chang-lin <sup>[17]</sup>, betreft de structuurtypen 6H, 15R en 69R.

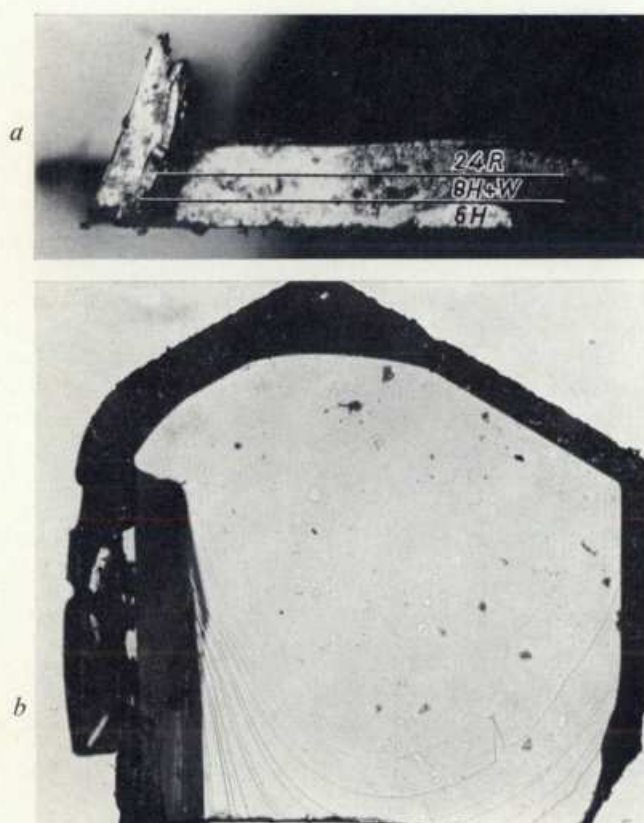


Fig. 12. Twee plaatvormige kristallen van  $\alpha$ -SiC in vergroeiing. a) Zij-aanzicht, b) bovenaanzicht van het grootste kristal. De in (a) aangegeven structuren werden door herhaalde röntgendiffractieopnamen na lamellair afslijpen bepaald (W duidt op wanorde).

### Kristalvergroeiingen als mogelijke oorzaak van polytypie

Het ziet ernaar uit dat het polytypieprobleem van siliciumcarbide tweeledig is en dat onderscheid gemaakt moet worden tussen de eenvoudige structuren en de meer gecompliceerde. De redenen daarvoor zijn alle reeds genoemd. De eenvoudige structuren groeien onder velerlei condities, hun groei wordt soms door verontreinigingen gestimuleerd, er zijn aanwijzingen voor verschillen in thermodynamische stabiliteit, er zijn sta-

biele analoga onder de intermetallische verbindingen, onder bepaalde omstandigheden groeien zij in monokristallijne vorm. Daar staat tegenover dat de meer gecompliceerde structuren uitsluitend bij hogere temperaturen via gastransport ontstaan, dat zij toevallig worden gevonden en men geen middelen kent om hun groei te bevorderen, dat zij qua structuur lijken op de eenvoudiger typen (174R lijkt op 6H, 168R op 15R, 120R op 4H), dat zij geen stabiele analoga hebben en dat zij vrijwel zonder uitzondering steeds vergroeid met een of meer van de eenvoudige typen voorkomen.

De verklaring voor de groei van de eenvoudige structuren lijkt nog ver te zoeken; voor de structuren met lange herhalingsafstanden heeft men wat meer aanknopingspunten, al schijnt geen der behandelde theorieën erg bevredigend te zijn. Nu gaan deze theorieën ervan uit dat het te onderzoeken kristal steeds zijn eigen interne geheugen heeft dat voor de groei nodig is, b.v. in de vorm van een schroefdislocatie of van roostertrillingen. Daardoor zou de stapeling der atoomlagen op de eenmaal begonnen wijze worden voortgezet. Zhdanov en Minervina <sup>[18]</sup> daarentegen hebben reeds meer dan twintig jaar geleden gesuggereerd dat de groeiende structuur in plaats daarvan ook best eens een extern geheugen zou kunnen bezitten. In concreto stelden zij zich voor dat de structuur van een kristal wordt bepaald door de wijze waarop het met andere kristallen is vergroeid.

Recentelijk hebben wij deze suggestie weer opgevat en opgemerkt <sup>[19]</sup> dat de hogere structuurtypen voorkomen in plaatvormige kristallen, die in de Lely-oven steeds groeien met de geheugenrichting (*c*-as) ongeveer parallel aan de polykristallijne cilinderwand. Een, zelfs plaatselijk sterk wisselende, geheugeninvloed van buiten is dus zonder meer denkbaar; deze zou in de relatieve oriëntatie van wand en groeiend monokristal te vinden zijn (fig. 13).

Bovenstaande hypothese wordt door een aantal feiten gesteund. Zo bevatten SiC-polyeders die in dezelfde oven groeien, maar met hun geheugenrichting vrijwel loodrecht op de wand, geen hogere typen. Deze oriëntatie van de kristallen schakelt blijkbaar de geheugeninvloed uit. Er ontstaat alleen 6H en wellicht ook 15R. Wel vindt men weer gecompliceerde structuren in polyeders die in zichzelf vergroeid zijn, zoals blijkt uit het voorkomen van inspringende hoeken. Hier vormen de met elkaar vergroeide delen blijkbaar elkaars geheugen.

<sup>[17]</sup> Kuo Chang-lin, *Scientia sinica* **15**, 604, 1966.

<sup>[18]</sup> G. S. Zhdanov en Z. V. Minervina, *J. Phys. USSR* **9**, 244, 1945.

<sup>[19]</sup> W. F. Knippenberg en A. H. Gomes de Mesquita, *Z. Kristallogr.* **121**, 67, 1965.

<sup>[20]</sup> A. H. Gomes de Mesquita, *J. Crystal Growth*, **3**, 4, 747, 1968.

<sup>[21]</sup> W. Kleber en P. Fricke, *Z. phys. Chemie (Leipzig)* **224**, 353, 1963.

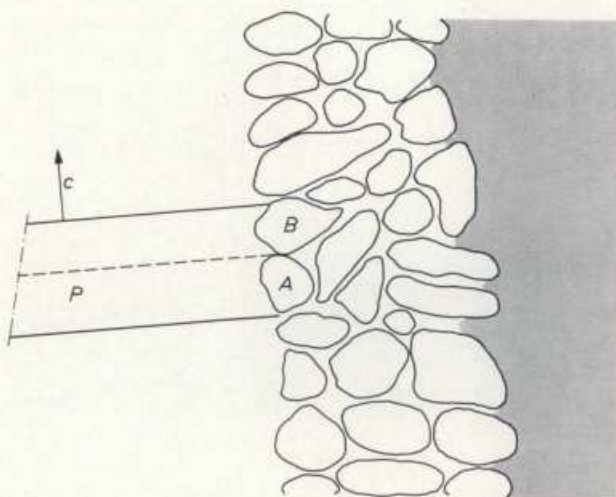


Fig. 13. Schetsmatige aanduiding van de groei van plaatvormige kristallen tegen een polykristallijne cilinderwand. De SiC-dubbel-lagen zijn loodrecht op het vlak van tekening gedacht, de herhalingsperiode ( $c$ -as) in het vlak van tekening. Er zijn redenen om aan te nemen dat de kristalplaat  $P$  bestaat uit lamellen waarvan de structuur mede wordt bepaald door vergroeiing met de korrels ( $A, B, \dots$ ) van de wand (zie tekst).

In één geval hebben wij een kwantitatieve relatie geconstateerd<sup>[20]</sup> tussen het gevormde structuurtype (33R) en de hoek  $\alpha$ , waaronder twee polyederhelften met elkaar waren vergroeid (fig. 14a). De verhouding van de kristallografische  $a$ - en  $c$ -assen was nl. exact gelijk aan  $\alpha$  (uitgedrukt in radialen), hetgeen zeer suggestief is voor het bestaan van een verband tussen vergroeiingswijze en structuurtype (fig. 14b).

Aanwijzingen voor het bestaan van een dergelijk verband vindt men ook in onderzoeken aan het verwante  $\text{CdI}_2$ , dat op verschillende manieren kan worden bereid: de methode die de meeste kristalvergroeiingen oplevert, leidt tevens tot de vorming van het grootste aantal verschillende structuren<sup>[21]</sup>.

Het lijkt ons dan ook toe dat hierin de sleutel tot de oplossing van het polytypieprobleem verborgen is, althans voorzover het de meer gecompliceerde structuren betreft. Echter, pas als ook op atomaire schaal het mechanisme begrepen is volgens hetwelk deze worden gevormd, zal dit probleem volledig opgelost zijn.

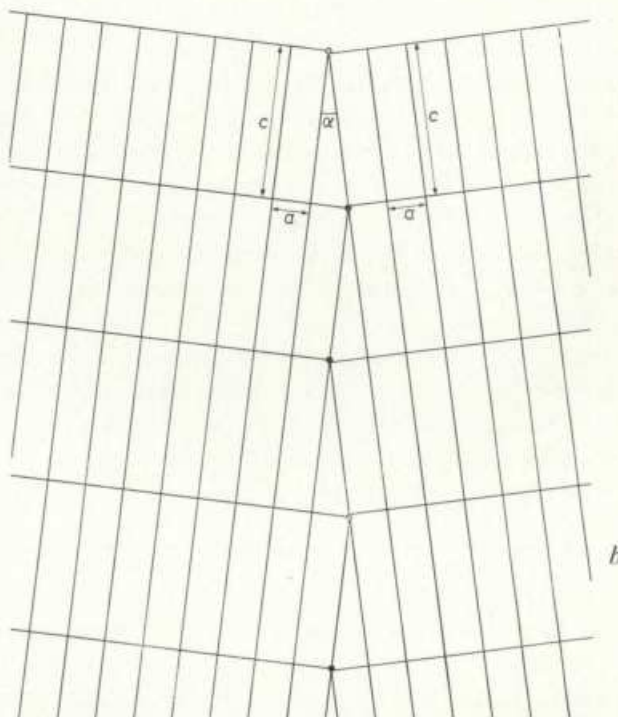
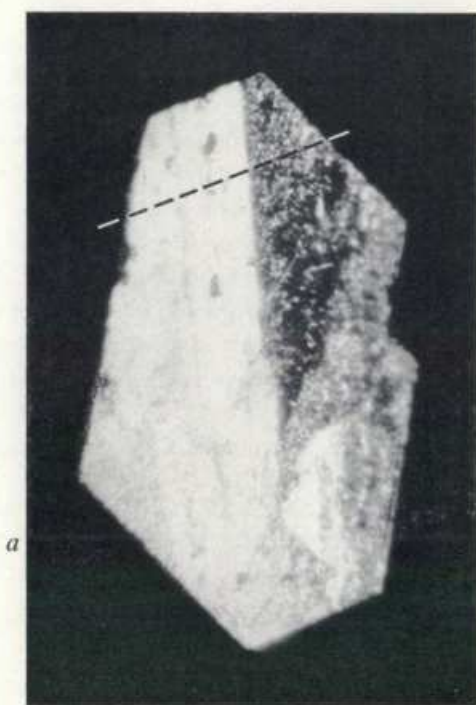


Fig. 14. a) Het topvlak van een kristal van het type 33R geplaatst in een lichtbundel. Het kristal bestaat duidelijk uit twee delen die een kleine hoek met elkaar maken. Een deel is juist in de reflexiepositie voor het opvallende licht en reflecteert dus zeer sterk. Voor het andere deel is dat niet het geval. b) Doorsnede gedacht langs de stippellijn van (a) en loodrecht op het daar afgebeelde kristalvlak. De hexagonale assen van de beide kristalhelften sluiten een kleine hoek  $\alpha$  in, die wellicht bepalend is voor het ontwikkelde structuurtype ( $\alpha = a/c$ ; zie tekst).

**Samenvatting.** Er bestaan diverse theorieën ter verklaring van het verschijnsel van polytypie zoals dat voorkomt bij siliciumcarbide. Enkele van de belangrijkste worden besproken. Deze hebben gemeen dat toevalsfactoren (roosterfouten), in het kristal zelf aanwezig, verantwoordelijk zijn voor de groei van het dikwijls zeer gecompliceerde structuurtype. Geen van deze theorieën is geheel bevredigend. Bij nadere beschouwing blijkt dat een klein aantal eenvoudige structuren onder zeer uiteenlopende omstandigheden

kan groeien. Hun ontstaan is daardoor moeilijker te verklaren dan dat van de meer gecompliceerde structuren, waarvan de groei weliswaar bij toeval tot stand komt, maar dan toch onder wat beter gedefinieerde omstandigheden. Het experiment levert duidelijk steun voor de stelling dat de laatstgenoemde hun ontstaan te danken kunnen hebben aan uitwendige invloeden, met name aan de wijze waarop zij met andere kristalindividueen vergroeid zijn.



## Bewaking van de regelstaafbesturing van de kernreactor te Dodewaard

Onlangs is te Dodewaard de eerste kernenergiecentrale voor elektriciteitsopwekking in Nederland, met een vermogen van 54 MW, in gebruik genomen. De kernreactor hiervan bevat als splijfstof uraniumoxide dat in buizen (de splijfstofstaven) is verpakt, met water als moderator en warmteoverbrenger. De reactor werkt bij een temperatuur van  $286^{\circ}\text{C}$  en een druk van 70 bar. Met de geproduceerde stoom wordt een turbine aangedreven.

De bediening van de centrale vereist veel elektronische hulpmiddelen: er zijn talrijke meetinrichtingen, met bijbehorende registratie-apparatuur, een communicatiesysteem met o.a. televisiecamera's, die op strategische punten zijn opgesteld, stralingsmeters voor de bescherming van het personeel, en verschillende computersystemen voor het verwerken van de meetgegevens afkomstig van vele onderdelen van de centrale. Een groot deel van deze apparatuur is opgesteld in de regelzaal, die in *fig. 1* gedeeltelijk is afgebeeld.

Voor het instandhouden van een geregelde kettingreactie moet de reactiviteit exact gehandhaafd blijven op de waarde  $k = 1$ , d.w.z. dat een bij een kernsplijting vrijgekomen neutron gemiddeld precies één ander neutron vrijmaakt door splijting van een andere uraniumkern. Dit wordt hier volgens een gebruikelijke methode bereikt door op bepaalde plaatsen *regelstaven* van neutronenabsorberend materiaal (37 in getal) meer of minder diep tussen de splijfstofstaven te steken. Aangezien de dichtheid van het kokende water (en daarmee de reactiviteit) onder in de reactor het grootst is, is het voor de regeling het gunstigst de regelstaven van onder naar boven in te steken.

Een van de eerder genoemde computersystemen heeft nu tot taak de regelstaafbesturing te controleren en foutieve handelingen van de reactormachinist te voorkomen. Over dit systeem, dat met de bijbehorende computer door Philips is vervaardigd, mogen hier enkele bijzonderheden worden vermeld.

Voor een zo economisch mogelijke werking van de reactor is het essentieel dat de regelstaven niet als één geheel worden verplaatst; veeleer moet men met de individuele regelstaven zodanig manoeuvreren dat enerzijds de warmteontwikkeling zo gelijkmatig mogelijk over het volume van de reactor verdeeld plaatsvindt en anderzijds elke splijfstofstaaf bij het vernieuwen van de reactorlading zo volledig mogelijk is verbruikt. Hiertoe moet de reactormachinist, afhankelijk van het gevraagde vermogen en van de omstandigheden in de reactor, regelmatig de posities van de regelstaven één voor één veranderen naar een aantal tevoren berekende en beproefde groeperingspatronen en volgens een bepaald programma <sup>[1]</sup>. Dit is vooral van belang in de startperiode, waarin door het uittrekken van regelstaven de reactor stapsgewijs kritisch wordt gemaakt ( $k = 1$ ). Wanneer de reactor eenmaal op vol vermogen werkt, is een kritische evenwichtstoestand bereikt waarin slechts weinig beweging van de regelstaven nodig is.

De regelstaafcomputer controleert de op- en neergaande beweging van elke staaf afzonderlijk, waarbij gezorgd wordt dat het gekozen groeperingspatroon, dat in de computer is opgeslagen, in acht wordt genomen. Een belangrijke nevenvoorwaarde hierbij is, dat de reactormachinist nooit zodanig in afwijking van de

voorgeschreven procedure mag kunnen handelen dat het aantal per seconde door een der regelstaven geabsorbeerde neutronen een bepaalde waarde, de toelaatbare „regelstaafwaarde”, overschrijdt. Men vermijdt hiermee dat de reactor door een te grote sprong van de reactiviteit onregelbaar zou worden wanneer door een storing de beschouwde staaf eruit zou vallen. Overigens is er dan nog een „noodrem” waarmee alle regelstaven gelijktijdig zeer snel de reactor in geschoten kunnen worden, waardoor de kettingreactie stopt.

In fig. 1 ziet men links van de reactormachinist het bedieningspaneel van de regelstaafcomputer. De wand

foto van het kernbord weer; het indicatie-instrument midden in het kader geeft informatie over de corresponderende regelstaaf. De cijfers en lichtvlekken hiervan indiceren de stand en de beweging van de regelstaaf. Voor de desbetreffende metingen aan de regelstaven zijn in de geleidingsbuis van elke staaf 23 positie-meldingscontacten aangebracht. De werking van de regelstaafmotoren kan op elk moment door een televisiecamera worden gadeslagen.

De computer is van het type PR 8000, met een geheugen van 8192 woorden van 24 bits en met de nodige randapparatuur. Het programma omvat 4700 woor-

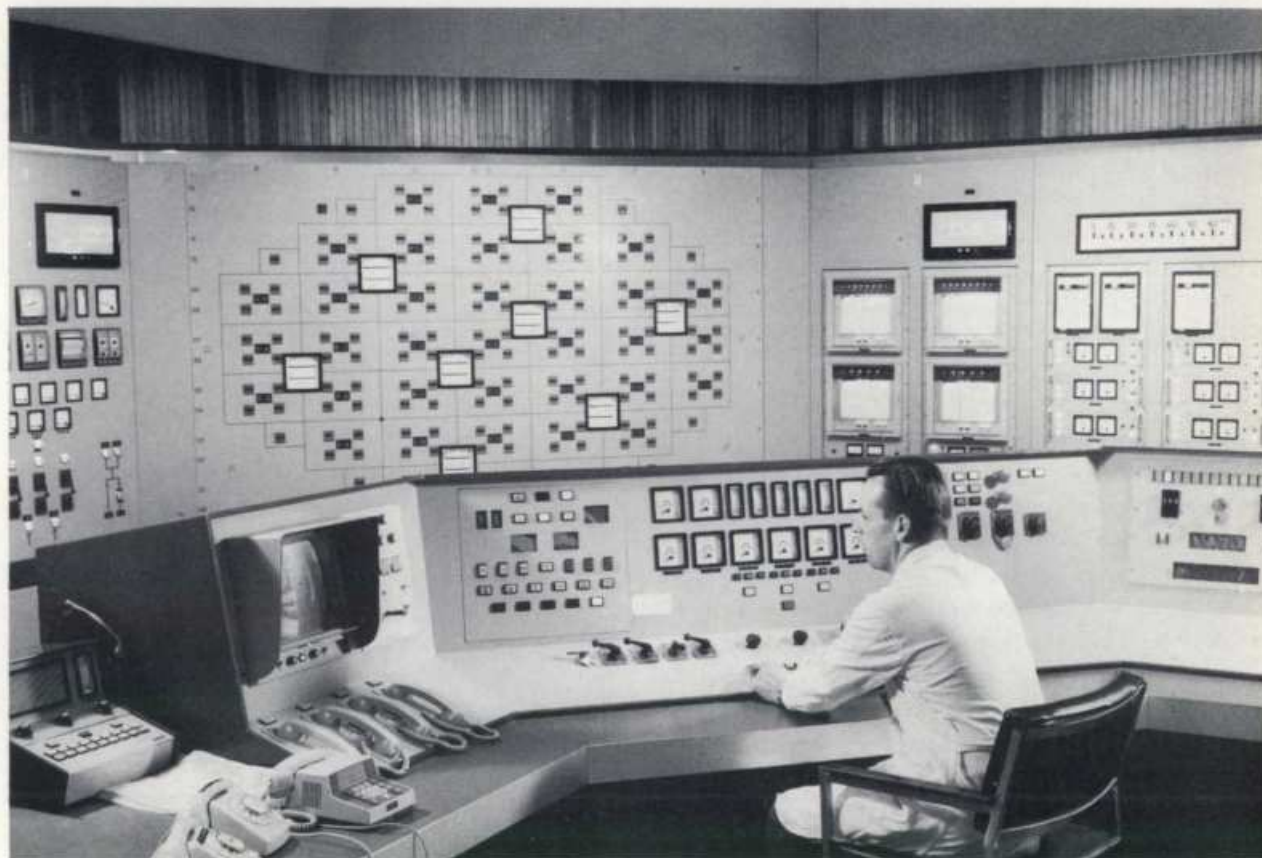


Fig. 1. Een gedeelte van de regelzaal van de kernenergiecentrale. Achter de bedieningslessenaar bevindt zich het „kernbord”, dat op 37 tellers en lampjes, gerangschikt naar het patroon van de splijfstof- en regelstaven in de reactor, o.a. de stand en de beweging van elke regelstaaf signaleert.

achter de lessenaar is het zg. kernbord, met instrumenten die informatie geven over de regelstaven en over de reactiviteit op een aantal plaatsen in de reactorkern. De plaats van de aanduidingen en van de instrumenten op het kernbord is in overeenstemming met de feitelijke situering in de reactor van de 156 splijfstofpakketten (die elk 36 splijfstofstaven bevatten). Er zijn telkens vier splijfstofpakketten rondom een (kruisvormige) regelstaaf geplaatst; zie fig. 2a. Fig. 2b geeft een detail-

den, terwijl voor de meetgegevens nog eens 2700 woorden nodig zijn.

Het in het geheugen opgeslagen programma is verdeeld in een aantal hoofdprogramma's:

- 1) *Programma voor het starten* van de computerprocedure voor de regelstaafwaardebegrenzing (initialisatie).

[1] J. C. Bruggink, Ingenieur 80, O 128, 1968 (no. 37).

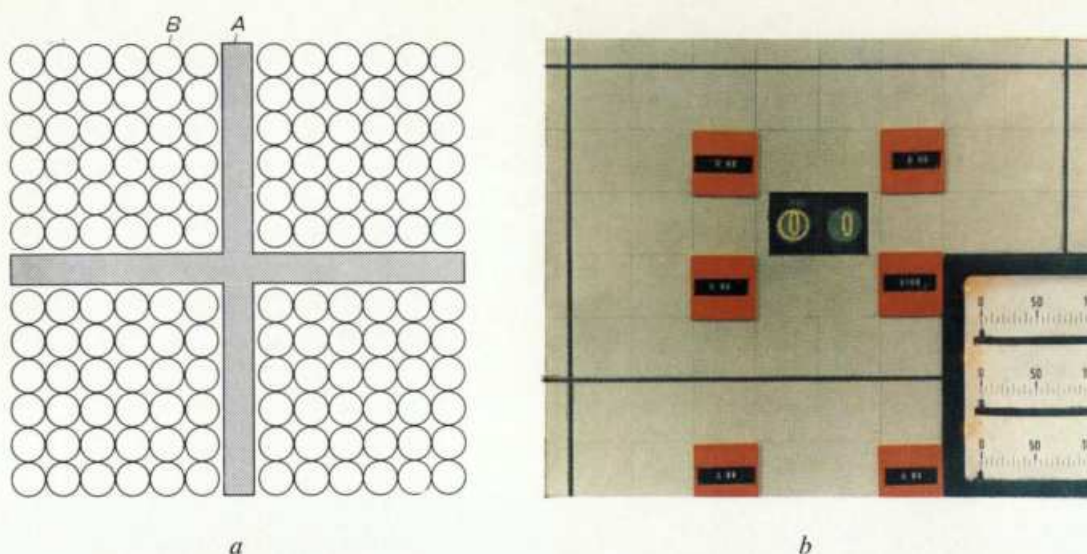


Fig. 2. a) Schematische voorstelling van de plaatsing van een regelstaaf (A) te midden van vier pakketten van splijfstofstaven. De regelstaaf, die een kruisvormige doorsnede heeft, bestaat uit buisjes van roestvast staal, die gevuld zijn met boriumcarbide; het geheel is gevat tussen platen van roestvast staal. B is een van de splijfstofstaven (13 mm Ø), die opgebouwd zijn uit tabletten uraniumoxide. b) Detail van het kernbord. In het centrale venstertje binnen elk kader op het kernbord verkrijgt men informatie over de corresponderende regelstaaf. De numerieke indicatie in twee decimalen op dit venster geeft de uittrekstand van de staaf weer. Door middel van een lichtend kader wordt aangeduid dat de regelstaaf gekozen is om verplaatst te worden. Bovendien worden de eindstanden gemarkeerd door gekleurde lichtvlekken. De vier rode vakjes hebben betrekking op de splijstofpakketten die om de regelstaaf zijn gegroepeerd, en de meetinstrumenten geven de plaatselijke reactiviteit op corresponderende punten in de reactorkern aan.

- 2) *Aftastprogramma's* voor het opnemen van informatie omtrent de staafposities, de door de reactor-machinist te verplaatsen regelstaaf, de bewegings-richting van staven en het spontaan verlopen („drift”) van een staaf, enz. De computer beschikt over een invoersysteem dat elke 125 ms 800 binaire signaalgevers aftast. Het uitvoergedeelte geeft digitale informatie door aan een bedieningspaneel en aan blokkeringsschakelingen van de aandrijfsystemen der regelstaven, waardoor verkeerde handelingen worden voorkomen. Waar nodig, is door redundantie in de signaalafgifte de betrouwbaarheid vergroot.
- 3) *Doorgeven van de informatie* van en naar het bedieningspaneel en de aandrijfsystemen voor de regelstaven.
- 4) *Uittypen door een logschrijver* van berichten betreffende regelstaafbegrenzingssysteem, reactorvermogen, volgordeprocedure bij de staafbediening en „topografisch” overzicht van de staafposities (over-

eenkomstig de indicaties op het kernbord), alsmede het melden van fouten, van de tijd en van staafdrift.

- 5) *Indicatie* van staafkeuze, toegepaste volgordeprocedure, bedieningsfouten, systeemfouten en correcties op kernbord en bedieningspaneel.
- 6) *Zelfcontrole van de computer* door middel van een testprogramma met betrekking tot pariteit, code-formering, instructiebehandeling, geheugenaccés en netspanning. Bij netspanningsstoringen treedt een programmeerprocedure in werking, waardoor de onderweg zijnde informatie wordt opgeslagen in het geheugen, dat daarna wordt beschermd tegen de gevolgen van het uitvallen van de geheugenbesturingsorganen.

H. van der Kooi

Ir. H. van der Kooi, medewerker van Philips' Hoofdindustriegroep PIT (Produkten voor Industriële Toepassing), Eindhoven.

## Een tweetrapscompressor met rolmembranen

H. J. Verbeek

*Bij de ontwikkeling van kleine zuigercompressoren streeft men thans voor een aantal toepassingen naar zg. olievrije compressie — bij grote industriële compressoren was dat reeds enige jaren het geval. In de hieronder besproken tweetrapscompressor worden gas en olie gescheiden gehouden door middel van rolmembranen.*

Voor een aantal toepassingen, zoals de liquefactie van gassen, verlangt men van de compressor dat deze het te comprimeren gas zo weinig mogelijk verontreinigt met olie. Men heeft zich er de laatste jaren dan ook bij de ontwikkeling van nieuwe zuigercompressoren op toegelegd de lek van olie langs de zuiger naar het te comprimeren gas zoveel mogelijk te beperken of geheel op te heffen. Een sterke beperking van de olielek is verkregen door toepassing van de zg. labyrintzuigers en van zuigers met zuigerveren van kunststof, die beide kunnen werken zonder smering. In compressoren die met dergelijke zuigers zijn uitgerust, staat de krukast niet in open verbinding met de cilinder. Wel is er in de scheidingswand een van pakking of olieschraapringen voorziene doorvoeropening voor de drijfstang, die uiteraard niet volkomen lekvrij kan zijn.

Een absolute afscheiding tussen de ruimte waarin zich het gas bevindt en de andere ruimten in de com-

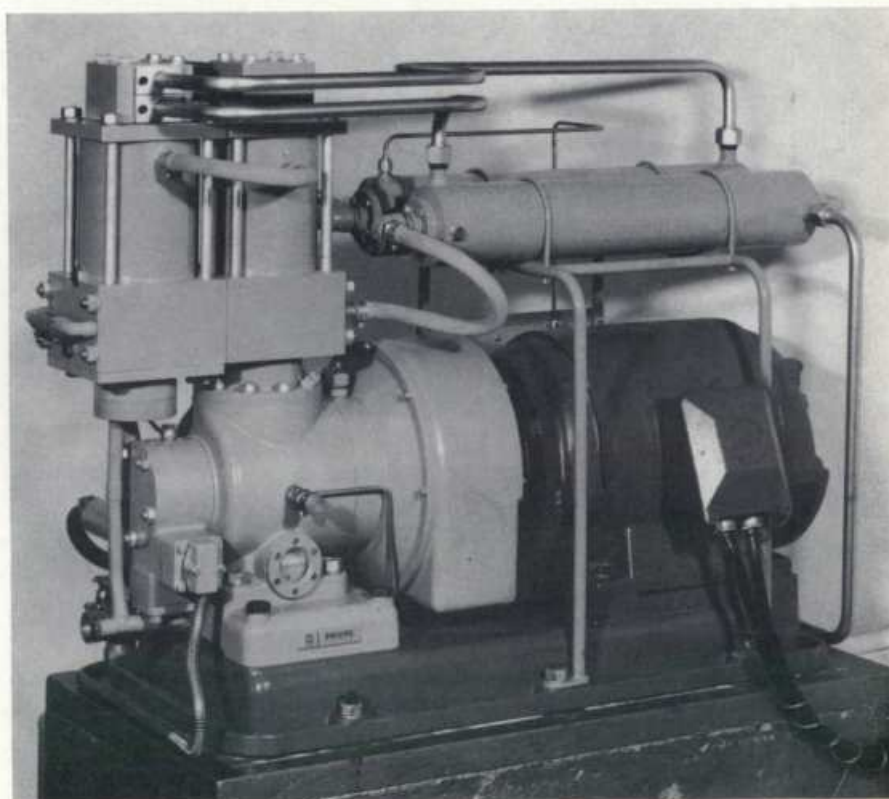


Fig. 1. Tweetrapscompressor met rolmembranen. Aanzuigdruk ca.  $2\frac{1}{2}$  bar. Persdruk ca. 20 bar. Gasstroom bij het comprimeren van helium ca.  $2\frac{1}{2}$  g/s. Toerental 960 omw/min. Maximaal opgenomen asvermogen 8 kW. Koelwaterverbruik ca. 500 l/h.

pressor verkrijgt men door met een membraan te werken; er kan dan tevens geen gas naar buiten lekken, zoals bij de bedoelde toepassingen veelal eveneens vereist wordt. De in sommige compressoren wel gebruikte vlakke membranen van metaal of kunststof hebben echter een niet al te lange levensduur. Veel gunstiger in dit opzicht zijn de enige jaren geleden in het Philips-

*Ir. H. J. Verbeek, medewerker van Philips' Hoofdindustriegroep PIT (Produkten voor Industriële Toepassing), Eindhoven.*

laboratorium ontwikkelde rolmembranen <sup>[1]</sup>, die meer dan 2 miljard maal op- en afgerold kunnen worden. De hieronder te bespreken compressor (*fig. 1*), die is ontwikkeld voor de Philips heliumliquefactor <sup>[2]</sup>, is met dergelijke membranen uitgerust. De compressor comprimeert het helium in de liquefactor in twee trappen van ca.  $2\frac{1}{2}$  tot ca. 20 bar, waarbij de gasstroom ca.  $2\frac{1}{2}$  g/s is. Hij is ook bruikbaar voor de compressie van andere inerte gassen en van waterstof. De gasstroom is niet regelbaar, omdat dat in de liquefactor niet nodig was.

In *fig. 2* vindt men een schematische doorsnede van de compressor. De zuiger  $P_1$  in de rechts getekende cilinder wordt via een kruk-drijfstaangmechanisme aangedreven door een motor (niet getekend). De zuiger  $P_2$  wordt langs hydraulische weg in beweging gebracht door  $P_1$ : doordat het bovenste deel van  $P_1$  een grotere diameter heeft dan het onderste, verdringt deze zuiger bij iedere neerwaartse slag een deel van de olie die de ruimte  $O_1$  vult (geschaduwde), zodat  $P_2$  naar boven gedrukt wordt, en omgekeerd <sup>[3]</sup>. Beide zuigers zijn afgedicht met een rolmembraan  $RD$ . De rolmembranen zijn hier niet uitgevoerd als ring, maar als gesloten vlak dat de kop van de zuiger geheel overdekt. De niet-afrollende delen zijn veel dikker dan de afrollende, wat allerlei voordelen biedt, zoals een geringere kans op lek worden door een kleine beschadiging, een goede warmte-isolatie en een gemakkelijker productie.

Onder de tweede cilinder bevindt zich een zuigerspomp, gevormd door de pomplunjer  $Pl$  en de kleppen  $V_1$  en  $V_2$ . Deze pompt, wanneer de compressor draait, continu olie van de krukast  $Ca$  naar  $O_1$ , en wel iets meer dan er uit  $O_1$  weglekt. De teveel opgepompte olie kan bij iedere opwaartse slag van  $P_2$  naar  $Ca$  terugstromen, doordat op zeker ogenblik de uitstroompoort  $H_1$  vrijkomt; de plaats van  $H_1$  bepaalt de hoogste stand die  $P_2$  kan bereiken.

Door het weglekken van olie uit  $O_1$  zal, wanneer de compressor stilstaat, de zuiger  $P_2$  langzaam zakken tot hij met het vlak  $A$  op de aanslag  $St$  komt te rusten. Voordat de compressor in werking gesteld kan worden, moet daarom olie in  $O_1$  gepompt worden, en wel zoveel dat  $P_2$  in de hoogste stand komt te staan — wanneer de compressor stilstaat, bevindt  $P_1$  zich nl. in de laagste stand. Dit kan geschieden door middel van de zuigerspomp  $OP_1$ .

Zoals men in *fig. 2* ziet, rusten de rolmembranen niet op de zuiger, maar op een kap  $C$  die om de zuiger glijdt en die zelf rust op een dikwandige pijp  $T$ . Deze pijp wordt gedragen door een stapel schotelveren  $Sp$  en glijdt om de leipen  $GP$  die zich in de holte van de zuiger bevindt. De ruimten  $O_2$  onder  $RD$  en  $C$  zijn gevuld met olie. Het geheel fungeert als een regelinrichting die ervoor zorgt dat de oliedruk in de

ruimten  $O_2$  steeds een constant bedrag ( $1\frac{1}{2}$  bar) lager is dan de gasdruk in de cilinder boven de zuiger, zoals voor rolmembranen van dit type vereist is <sup>[1]</sup>.

Deze regelinrichting is voor beide zuigers identiek en werkt als volgt. De olie die langs de cilinder van de ruimte  $O_1$  naar de ruimte  $O_2$  lekt, kan de kap niet verder omhoog drukken dan tot de stand waarbij de groef  $G$  de opening  $H_2$  van het door  $GP$  lopende kanaal bereikt, door welk kanaal olie uit  $O_2$  naar de krukast kan terugstromen. Het verschil tussen de oliedruk in  $O_2$  en de gasdruk in de cilinder correspondeert daardoor steeds met de kracht die de veer bij de zojuist genoemde stand op de kap uitoefent.

Natuurlijk werken de regelsystemen van de beide rolmembranen niet onder gelijke omstandigheden. De oliedruk in  $O_1$  verschilt slechts weinig van de gasdruk in de tweede cilinder, maar verschilt veel met de gasdruk in de eerste cilinder. Daardoor is ook het verschil in de oliedruk tussen  $O_1$  en  $O_2$  voor de tweede cilinder zeer veel geringer dan voor de eerste, zóveel dat de olie lek door de spleet  $S_1$  niet voldoende is om het regelsysteem in de tweede cilinder goed te doen werken. De zuiger  $P_2$  is daarom nog voorzien van een lekkanaal  $L$ .

Daar de zuigers zich snel heen en weer bewegen wanneer de compressor draait, ondervinden de zuigerkappen vrij grote traagheidskrachten. Om te voorkomen dat deze het drukverschil dat over de rolmembranen staat zouden doen fluctueren, is ervoor gezorgd dat deze krachten gecompenseerd worden.

Dit is bij de onderhavige constructie mogelijk door de veerconstante van de schotelveren geschikt te kiezen. Wanneer de zuiger stijgt, gaat nl. het gekromde deel van het rolmembraan niet even ver omhoog (*fig. 3*). Dit heeft tot gevolg dat een deel van de olie die  $O_2$  vult verdrongen wordt en de zuigerkap iets omhoog doet gaan ten opzichte van de zuiger. In de hogere stand oefent de veer  $Sp$  een kleinere opwaartse kracht op de kap uit. De invloed van de traagheidskracht op het drukverschil dat over het rolmembraan staat, wordt geëlimineerd wanneer in de uiterste stand deze vermindering van de veerkracht gelijk is aan de traagheidskracht.

De temperatuur van het gas in de cilinders fluctueert aanzienlijk en bedraagt gemiddeld ongeveer 100 °C. Het dunne, afrollende deel van de rolmembranen kan

[1] J. A. Rietdijk, H. C. J. van Beukering, H. H. M. van der Aa en R. J. Meijer, Een hermetische stang- en zuigerafdichting voor grote drukverschillen, *Philips techn. T.* **26**, 345-354, 1964/65. In dit artikel wordt ook een experimentele rolmembraan-compressor besproken.

[2] G. J. Haarhuis, De Philips heliumliquefactor, *Philips techn. T.* **29**, 205-212, 1968 (no. 7).

[3] Deze wijze van aandrijven is het eerst toegepast in de Philips koudgaskoelmachine type C. Zie A. A. Dros, Een koudgaskoelmachine met hydraulische zuigeraandrijving voor industriële toepassingen, *Philips techn. T.* **26**, 355-367, 1964/65.

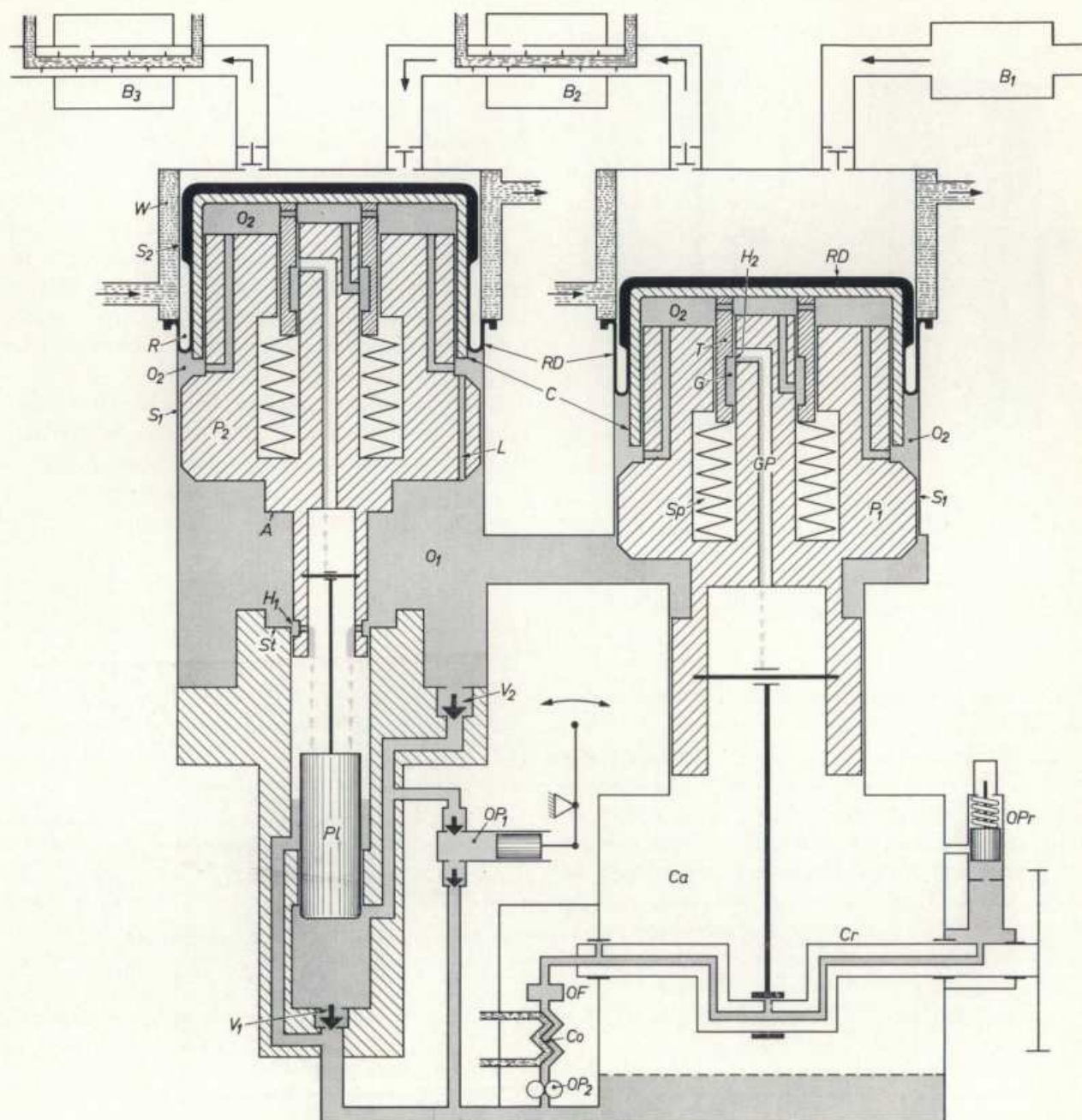


Fig. 2. Vereenvoudigde schematische doorsnede van de tweetrapscompressor met rolmembranen.  $Ca$  krukast.  $Cr$  krukast.  $P_1$  en  $P_2$  zuigers (diameter 110 mm, slag resp. 60 en 25 mm).  $O_1$  en  $O_2$  met olie gevulde ruimten.  $Pl$  pompplunjer.  $V_1$  zuigklep.  $V_2$  persklep.  $H_1$  overstroompoort, die de hoogste stand van  $P_2$  fixeert.  $OP_1$  hulppomp.  $RD$  rolmembraan.  $C$  zuigerkap.  $T$  dikwandige buis die  $C$  draagt;  $T$  glijdt om de leipen  $GP$  en rust op een stapel schotelveren  $Sp$ .  $S_1$  spleet tussen zuiger- en cilinderwand.  $S_2$  spleet tussen rolmembraan en cilinderwand.  $W$  mantel voor waterkoeling.  $R$  rolmembraankamer.  $A$  onderzijde van  $P_2$ , die op de aanslag  $St$  komt te rusten wanneer de compressor stilstaat en er voldoende olie uit  $O_1$  is weggelekt.  $B_1$  buffervat in de zuigleiding.  $B_2$  en  $B_3$  buffervaten, resp. in de tussen- en in de persleiding, ieder met waterkoeling (in fig. 1 boven de motor).  $OP_2$  oliepomp (tandrad).  $Co$  oliekoeler.  $OF$  oliefilter en  $OPr$  oliedrukregelaar, die tezamen de smering van de krukast verzorgen.

echter niet in contact komen met gas van deze hoge temperatuur. Om het afrollende deel van het membraan te bereiken, moet het gas nl. de nauwe spleet  $S_2$  passeren; het koelt daarbij af doordat de cilinderwand ter plaatse met water gekoeld wordt. Verder wordt in de

ruimte  $R$ , de rolmembraankamer, een geringe hoeveelheid koude ontwikkeld. Dit is, naar men kan afleiden, te danken aan het feit dat de volumevariatie van  $R$  in tegenfase is met die van de ruimte boven de zuiger, en wel doordat de bovenwand van  $R$  gevormd wordt door

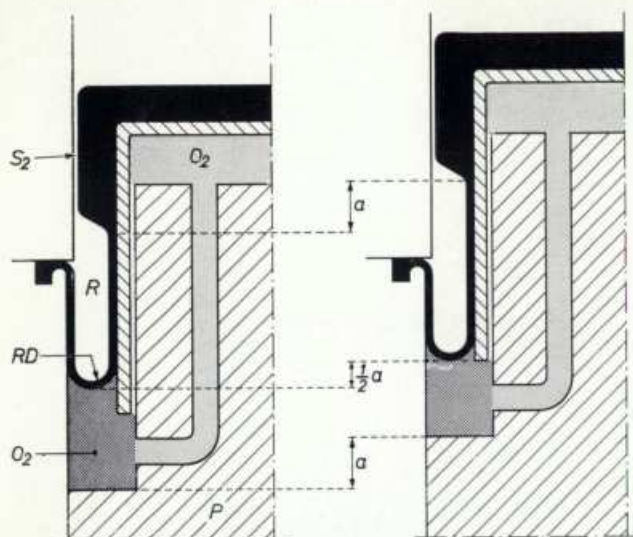


Fig. 3. Schematische doorsnede van een deel van de zuiger  $P$  en van het rolmembraan  $RD$ , dat de met olie gevulde ruimte  $O_2$  scheidt van de met gas gevulde ruimte  $R$ , de zg. rolmembraankamer. Wanneer de zuiger een opwaartse slag  $a$  maakt, verplaatst het gekromde deel van  $RD$  — de „bodem” van  $R$  — zich slechts  $\frac{1}{2}a$ , zodat het volume van  $R$  toeneemt en dat van het donker geschaduwde deel van  $O_2$  afneemt.

het dikke gedeelte van het membraan, dat dezelfde slag maakt als de zuiger (fig. 3).

De rolmembranen zijn gemaakt van polyurethaanrubber. Bij het zuiveren van het rubber en voor het persen van de membranen worden speciale procédés toegepast, waardoor de membranen voldoen aan zeer hoge eisen van zuiverheid en maatnauwkeurigheid. De levensduur bedraagt ten minste 2000 uur en is doorgaans zelfs langer dan 4000 uur. Het verwisselen van een rolmembraan vereist niet meer dan ca. 30 min.

De krukast  $Ca$  is hermetisch gesloten. De druk erin bedraagt onder normale omstandigheden ca. 1 bar.

Indien een der rolmembranen zou gaan lekken, stroomt het te comprimeren gas naar  $Ca$  zodat de druk in deze ruimte stijgt. Een voor druk gevoelige schakelaar schakelt de compressor dan uit. De krukast is van zodanige constructie dat deze de hoge druk die er bij breuk van een membraan in kan optreden, gemakkelijk kan verdragen.

Boven op ieder der cilinders bevindt zich een kleppeneenheid, die een pers- en een zuigklep bevat en die, zonodig, snel vervangen kan worden. De beide kleppen van iedere eenheid zijn uitgevoerd als concentrische ringen. De kleppeneenheden zijn voor beide cilinders gelijk.

Het is mogelijk volgens het hierboven beschreven principe compressoren te construeren die meer dan twee trappen hebben, wat een hogere persdruk kan opleveren, en waarvan de aanzuigdruk een andere waarde heeft, b.v. 1 bar of nog lager.

**Samenvatting.** De compressor is ontwikkeld als onderdeel van de Philips heliumliquefactor en comprimeert daarin stromend heliumgas ( $2\frac{1}{2}$  g/s) in twee trappen van ca.  $2\frac{1}{2}$  tot ca. 20 bar. De eerste zuiger wordt, via een krukas, aangedreven door een motor, de tweede langs hydraulische weg (olie) door de eerste. De slag van de tweede zuiger wordt bepaald door een overloopenrichting; de weggelekte olie wordt continu teruggepompt. De compressie-ruimten zijn afgedicht met rolmembranen van polyurethaanrubber, gefabriceerd volgens een speciaal procédé, die de kop van de zuigers geheel overdekken. Ze zijn echter niet over de zuiger zelf gespannen, maar rusten op een zuigerkap waaronder zich ook olie bevindt en waarvan de stand ten opzichte van de zuiger wordt bepaald door een overloopenrichting. Het verschil tussen de druk van de olie en de gasdruk in de cilinder is constant en wordt bepaald door de kracht die een veer bij de genoemde stand op de kap uitoefent. Dit drukverschil wordt niet beïnvloed door de traagheidskrachten die op de zuigerkap werken. Het gas dat met het afrollende deel van de rolmembranen in aanraking komt is veel kouder dan het gas in de rest van de cilinder. Het is mogelijk volgens hetzelfde principe ook compressoren te construeren met meer dan twee cilinders en een andere aanzuigdruk.

## Recente wetenschappelijke publikaties

Deze publikaties zijn afkomstig van medewerkers van laboratoria en fabrieken, behorende tot of samenwerkende met ondernemingen van het Philipsconcern, in het bijzonder van medewerkers van de navolgende research-laboratoria:

|                                                                                                                |   |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---|
| Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven                                                                  | E |
| Mullard Research Laboratories, Redhill (Surrey), Engeland                                                      | M |
| Laboratoires d'Electronique et de Physique Appliquée, Limeil-Brévannes (Val-de-Marne), Frankrijk               | L |
| Philips Zentrallaboratorium GmbH, Laboratorium Aken, Weisshausstrasse, 51 Aachen, Duitsland                    | A |
| Philips Zentrallaboratorium GmbH, Laboratorium Hamburg, Vogt-Kölln-Strasse 30, 2 Hamburg-Stellingen, Duitsland | H |
| MBLE Laboratoire de Recherches, 2 avenue Van Becelaere, Brussel 17 (Boitsfort), België.                        | B |

Van de meeste dezer publikaties zullen binnenkort overdrukken beschikbaar zijn. Men kan deze aanvragen bij het betrokken laboratorium (zie de codeletter) of bij de Administratie van Philips' Natuurkundig Laboratorium, Eindhoven.

- G. Arlt & H. Schweppe:** Paratellurite, a new piezo-electric material. Solid State Comm. **6**, 783-784, 1968 (No. 11). A
- V. Belevitch & Ph. Piret:** Théorie de l'oscillateur à deux fréquences d'accord dont le rapport est voisin de 3. Rev. HF **7**, 171-176, 1968 (No. 6). B
- P. Billard & C. Hily:** Les systèmes optiques à champ étendu utilisables dans l'infrarouge. Acta electronica **11**, 237-325, 1968 (No. 3). L
- G. Blasse & A. Brill:** Photoluminescent efficiency of phosphors with electronic transitions in localized centers. J. Electrochem. Soc. **115**, 1067-1075, 1968 (No. 10). E
- R. Bleekrode:** A spectroscopic method for the determination of temperatures in hot gaseous systems. Physics Letters **27A**, 673-674, 1968 (No. 10). E
- A. J. van Bommel & F. Meyer:** Reply to the comment of H. K. Lintz concerning "LEED study of a nickel induced surface structure on silicon (111)". Surface Sci. **12**, 391-392, 1968 (No. 2). E
- G.-A. Boutry, H. Dormont, J.-C. Richard & P. Saget:** Etude de films épitaxiés de potassium et de rubidium par diffraction d'électrons de faible énergie. C.R. Acad. Sci. Paris **267B**, 255-258, 1968 (No. 4). L
- G. Bouwhuis:** On the anomalous circular polarization of the 1.523  $\mu$  He-Ne laser line. Physics Letters **27A**, 693, 1968 (No. 10). E
- C. F. Brockelsby:** Mullard Research Laboratories, Redhill, Surrey. N.E.C. Rev. (National Electronics Council) **4**, 117-124, 1968 (No. 4). M
- C. M. van der Burgt:** Enkele toepassingen van ultrageluid, IV. Piëzomagnetische en piëzo-elektrische transducenten voor diverse ultrasone toepassingen. Ingenieur **80**, O 168-181, 1968 (No. 45). E
- H. B. G. Casimir:** Chimistes, physiciens et ingénieurs, leur collaboration dans la recherche industrielle. Proc. 36ème Congrès int. de chimie industrielle, Bruxelles 1966, p. 64-66; 1968. E
- H. B. G. Casimir:** On electromagnetic units. Helv. phys. Acta **41**, 741-742, 1968 (No. 6/7). E
- E. Constant** (Faculté des Sciences de Lille) & **A. Semichon:** Diodes semiconductrices en régime d'avalanche. Application aux hyperfréquences. Onde électr. **48**, 703-721, 1968 (No. 496/497). L
- C. D. Corbey, R. Davies & B. H. Newton:** Varactor harmonic-generator chain as a pump source for a parametric amplifier. Electronics Letters **4**, 397-398, 1968 (No. 19). M
- I. Flinn:** Extent of the 1/f noise spectrum. Nature **219**, 1356-1357, 1968 (No. 5161). M
- N. J. Freedman & L. K. Brundle:** Nonlinear behaviour of magnetostatic surface waves. Electronics Letters **4**, 427-428, 1968 (No. 20). M
- Y. Genin:** Gaussian estimates and modern linear discrete filtering methods. Rev. A **10**, 70-75, 1968 (No. 2). B
- J. C. M. Henning & H. van den Boom:** ESR studies on divalent iron in Cs<sub>3</sub>ZnCl<sub>5</sub>. Physics Letters **27A**, 685-686, 1968 (No. 10). E
- H. Leich** (Faculté Polytechnique de Mons) & **Ph. van Bastelaer:** La synthèse des quadripôles non dissipatifs au moyen de capacités et de gyrateurs déséquilibrés. Rev. MBLE **11**, 31-48, 1968 (No. 2). B

- F. A. Lootsma:** Constrained optimization via penalty functions.  
Philips Res. Repts. **23**, 408-423, 1968 (No. 5). *E*
- F. A. Lootsma:** Constrained optimization via parameter-free penalty functions.  
Philips Res. Repts. **23**, 424-437, 1968 (No. 5). *E*
- P. Nagels** (Solid State Physics Dept. SCK, Mol, Belgium), **M. Denayer** (Sol. St. Ph. Dept. SCK, Mol), **H. J. de Wit & C. Crevecoeur:** Comments on "The Hall mobility of electrons and holes in MnO at high temperature" by Gvishi *et al.*  
Solid State Comm. **6**, 695-696, 1968 (No. 10). *E*
- A. G. van Nie:** Noise level and zero-drift of broad-band electrometers used for measuring small currents.  
Electronic Engng. **40**, 520-523, 1968 (No. 487). *E*
- G. Piétri:** The transfer method, a new technique for the sensitization of photoelectric tubes.  
IEEE Trans. NS-15, No. 3, 171-178, 1968. *L*
- L. J. van de Polder:** Courbe de réponse spectrale désirée du tube „Plumbicon” et du système optique dans une caméra de télévision en couleur.  
Onde électr. **48**, 880-883, 1968 (No. 499). *E*
- K. Reiber:** Absorption von Ultraschall in Tellur.  
Solid State Comm. **6**, 779-781, 1968 (No. 11). *A*
- J. Roos & J. Koorneef:** Thin bilaminar piezodisks used as microphone and telephone membranes.  
35th Conv. Audio Engng. Soc., New York 1968, preprint No. 589 (J-5), 3 pp. *E*
- W. Schilz:** Anisotropy of high-field helicon propagation in PbTe.  
Phys. Stat. sol. **29**, 559-568, 1968 (No. 2). *H*
- K. Walther:** Anisotropy of magnetoacoustic attenuation and deformation potential in bismuth.  
Phys. Rev. **174**, 782-790, 1968 (No. 3). *H*
- H. W. Werner & H. A. M. de Grefte:** Improvements in noise level and zero drift of a broadband electrometer used for ion detection in a mass spectrometer.  
Electronic Engng. **40**, 493-496, 1968 (No. 487). *E*
- G. Zanmarchi:** Luminescence of the aluminium centre in cubic SiC: dependence of the recombination rates on the intensity of the light excitation.  
J. Phys. Chem. Solids **29**, 1727-1736, 1968 (No. 10). *E*
- G. Zanmarchi & C. Haas:** Magnon drag.  
Philips Res. Repts. **23**, 389-407, 1968 (No. 5). *E*

*Inhoud van Philips Telecommunication Review* **28**, No. 1, 1968:

- H. J. Kramer:** The SR 600 series of transistorized radio-link equipment (p. 1-20).  
**A. E. Serrure:** Test results on 6 MHz telephone line equipment on small-bore coaxial cables on a trial route between Brussels and Dendermonde (p. 21-30).  
**P. W. L. van Iterson:** 5 kW HF communication ISB transmitter with transistorized driving equipment series RZ 510 (p. 31-43).

*Inhoud van Electronic Applications* **28**, No. 4, 1968:

- J. Cohen & J. Oosterling:** Stable a.c. gain from a simple direct-coupled amplifier (p. 125-134).  
**W. Smulders:** Thermal drift in a junction transistor and its effect on the circuit (p. 135-140).  
**P. A. Neeteson:** Hysteresis and negative resistance in the Schmitt trigger (p. 141-154).  
**B. Overgoor:** A camera tube amplifier with FET input (p. 155-159).

*Inhoud van Mullard Technical Communications* **10**, No. 95, 1968:

- S. Sijstra:** Vertical deflection amplifier for 150 MHz oscilloscope (p. 158-166).  
**K. Hart & F. G. Oude Moleman:** Horizontal deflection amplifier for 150 MHz oscilloscope (p. 167-174).  
**P. A. Neeteson:** Schmitt trigger as level detector: analysis and performance of FCL 101 (p. 175-181).  
**F. A. Sowan:** Light units in SI (p. 182-184).